

**Einbeziehung der Spaltproduktfreisetzung
in die numerische Simulation des
AVR-Abbrand-Umwälzgeschehens und
Vergleich mit den VAMPYR-Resultaten**

von

J. Weber

D 82 (Diss. T. H. Aachen)

INCLUSION OF FISSION PRODUCT RELEASE
IN THE NUMERICAL MODEL
OF AVR-FUEL CYCLE STRATEGY AND
COMPARISON WITH VAMPYR-MEASUREMENTS

by
Jürgen Weber

Abstract

This study deals with the calculations of Cs-137 and Sr-90 fission product release from the AVR-core during normal operation. For this reason a computational model - up to now only used for calculations of irradiation experiments - was adapted to the special conditions of a multi-fuel cycle pebble bed reactor. Taking into account the available transport data and the actual power and temperature history the time dependant specific activity of the cooling gas was computed during the operation period 1968 - 1975. In case of Cs-137 the calculated and measured values correspond up to a factor four. For Sr-90 the transport data and the transport mechanism by dust require further examinations.

EINBEZIEHUNG DER SPALTPRODUKTFREISETZUNG
IN DIE NUMERISCHE SIMULATION
DES AVR-ABBRAUD-UMWÄLZGESCHEHENS UND
VERGLEICH MIT DEN VAMPYR-RESULTATEN

von
Jürgen Weber *)

Kurzfassung

Diese Arbeit behandelt die Berechnung der Cs-137- und Sr-90-Spaltproduktfreisetzung aus dem AVR-Core während des Normalbetriebes.

Ein bisher nur an Bestrahlungsexperimenten erprobtes Rechenmodell wurde dazu den besonderen Bedingungen eines Mehrfachdurchlaufreaktors angepaßt. Mit den zur Verfügung stehenden Transportdaten wurde die zeitabhängige spezifische Kühlgasaktivität während der Betriebszeit von 1968 - 1975 unter Beachtung der tatsächlich gefahrenen Leistungs- und Temperaturgeschichte errechnet.

Für Cs-137 stimmen die errechneten und gemessenen Werte bis zu einem Faktor 4 überein. Für Sr-90 bedürfen die Transportdaten und der Transportmechanismus durch Staub genauerer Untersuchung.

*) Diese Arbeit entstand bei der Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor AVR GmbH in enger Zusammenarbeit mit dem Projekt HTR-Brennstoffkreislauf (HBK).

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1 EINLEITUNG	1
2 AUFBAU DES AVR-FREISETZUNGSRECHENMODELLS	3
2.1 Eigenart der AVR-Freisetzung	3
2.2 Der nukleare Programmteil FIMEX	4
2.2.1 Beschickung und Kugelfließen	4
2.2.2 Die Abbrandrechnung	6
2.2.2.1 Die Schwermetallkette	7
2.2.2.2 Die Spaltproduktkette	7
2.2.3 Der Kugelabbrand	8
2.3 Das Spaltproduktfreisetzungsprogramm SLIPPER	10
2.3.1 Das mathematische Modell	11
2.3.2 Der Programmablauf	13
2.4 Das AVR-Freisetzungsprogramm	15
2.4.1 Die Einbindung des SLIPPER-Codes in das AVR-Nachrechnungsmodell	15
2.4.2 Anwendungsbereich von SPAR	19
3 ERLÄUTERUNG UND FESTLEGUNG DER MODELLPARAMETER	22
3.1 Festlegung der Material- und Transportdaten	23
3.1.1 Brennelement- und CP-Kenngrößen	24
3.1.2 Spaltausbeute des Cs-137 und Sr-90	26
3.1.3 Die Wärmeleitfähigkeit	27
3.1.3.1 Wärmeleitfähigkeit der beschichteten Teilchen	27
3.1.3.2 Wärmeleitfähigkeit der BE-Typen	28
3.1.4 Brennelement- und CP-Kontamination	31
3.1.4.1 CP-Kontamination der AVR-Brennelementtypen	32
3.1.4.2 Kontamination der AVR-Brennelementtypen	33

	Seite
3.1.5 Die Transportdaten für Cs-137 und Sr-90	36
3.1.5.1 Die Recoilreichweite	37
3.1.5.2 Die Diffusionsdaten	38
3.1.5.3 Der Evaporationsprozeß	42
3.2 Die nuklearen Modellparameter	44
3.2.1 Die Aufbereitung der neutronenphysikalischen Daten	44
3.3 Die Betriebsdaten	45
3.3.1 Berechnung und Bedeutung des Massendurchsatzes	47
3.3.2 Berechnung und Wahl der Temperaturverteilung	49
3.3.2.1 Das Temperaturprogramm NECKAR-MOD	50
3.3.2.2 Der Einsatz der Temperaturverteilung	51
3.4 Die diffusive Coretemperatur	52
4 DIE KÜHLGASAKTIVITÄTSMESSUNGEN AM AVR	58
4.1 Das Heißgasexperiment VAMPYR	58
4.1.1 Aufbau und Durchführung	59
4.1.2 Der repräsentative Charakter der VAMPYR-Messung	61
4.2 Das Kaltgasfilter-Experiment	62
4.3 Die Meßergebnisse	63
4.3.1 Die Bedeutung der VAMPYR-Versuche für die Freisetzungsrechnung	67
5 EINSATZ DES RECHENMODELLS FÜR DIE AVR-BETRIEBSZEIT VON 1968 BIS 1975	69
5.1 Der Aufbau des Spaltproduktinventars	69
5.2 Die BE-Typen-Anteile und ihre Verteilung	71
5.3 Die spezifische Kühlgasaktivität	73
5.3.1 Die spezifische Kühlgasaktivität als Funktion der diffusiven Coretemperatur	78

	Seite
5.3.2 Der Vergleich zwischen Rechnung und Messung	82
5.3.3 Staubanteil und Kühlgasaktivität	82
5.3.4 Die Cs-137 Kühlgasaktivität	83
5.3.5 Die Sr-90 Kühlgasaktivität	88
5.3.6 Die Kühlgasaktivität der BE-Typen	90
5.4 FR- und R/B-Werte	96
5.5 Die Freisetzungsrates und die akkumulierte Aktivität	101
5.6 Die räumliche Freisetzungsverteilung	105
5.7 Die Bedeutung der SPAR-Rechnung für Freisetzungsstudien	109
6 ZUSAMMENFASSUNG	112
7 LITERATURVERZEICHNIS	114

VERZEICHNIS DER TABELLEN

	Seite
Tab. 1 Freisetzungsscharakteristische Brennelement- und Coated-particle-Daten	25
Tab. 2 Spaltausbeute der 12 Schwermetalle (HM)	26
Tab. 3 Ausgewählte Wärmeleitfähigkeit in den coated particles	28
Tab. 4 Wärmeleitfähigkeiten von Schale und Matrix der unbestrahlten Brennelemente	29
Tab. 5 Leistungs- und Brennelementanteil der eingesetzten BE-Typen für die ersten beiden Betriebsjahre	30
Tab. 6 BE-Typ-spezifische Coated-particle-Kontamination	33
Tab. 7 Zugabe und Kontamination der AVR-Nachfüllchargen	34
Tab. 8 BE-Typ-spezifische Kontamination im Programm SPAR	36
Tab. 9 Recoilreichweiten von Caesium und Strontium	37
Tab. 10 Transportdaten für Cs-137 im coated particle	39
Tab. 11 Transportdaten für Sr-90 im coated particle	40
Tab. 12 Transportdaten im Graphit	40
Tab. 13 Koeffizienten der Adsorptionsisothermen	43
Tab. 14 Kennzeichnung des Abbrand-Umwälzzustands durch die diffusive Temperatur	56
Tab. 15 Teilübersicht der VAMPYR- und KF-Experimente	64
Tab. 16 Ergebnisse der VAMPYR- und KF-Experimente	65
Tab. 17 Zusammenhang zwischen Kühlgasaktivität (Cs-137) und diffusive Temperatur	78
Tab. 18 Radiale typabhängige Kühlgasaktivität zweier WB bei gleicher Gasaustrittstemperatur	79
Tab. 19 Zusammenstellung der Staubmassen und KF-Aktivitäten	83
Tab. 20 Vergleich der VAMPYR- und SPAR-Aktivitäten des Cs-137	84
Tab. 21 Faktorabweichungen in den Temperaturgruppen	87
Tab. 22 Vergleich der VAMPYR- und SPAR-Aktivitäten des Sr-90	88
Tab. 23 BE-Typ-abhängige FR- und R/B-Werte für Cs-137	98
Tab. 24 FR- und R/B-Werte in der Zeit der Wechselbeschickung	100

	Seite
Tab. 25 Temperaturabhängige Freisetzungsraten für Cs-137 und Sr-90	102
Tab. 26 Anteil der Partikelkonzepte am Coreaufbau	103
Tab. 27 Freisetzungsanteile aus den verschiedenen Partikel- konzepten	103
Tab. 28 Freisetzungsanteile der Kanäle	107
Tab. 29 Gegenüberstellung der Cs-137-VAMPYR- und SPAR-Kühl- gasaktivitäten der äußeren Corebereiche	108
Tab. 30 Cs-137-Corefreisetzung aus einem 3000-MW _{th} -Kugel- haufenreaktor	110
Tab. 31 Sr-90-Corefreisetzung aus einem 3000-MW _{th} -Kugel- haufenreaktor	111

VERZEICHNIS DER ABBILDUNGEN

	Seite
Abb. 1 Regionsverteilung des AVR-Cores	6
Abb. 2 Vereinfachte Cs- und Sr-Kettenstruktur	8
Abb. 3 Vergleich der Spaltstoffverläufe U-235 und U-233	10
Abb. 4 Flußdiagramm des AVR-Freisetzungsprogramms	17
Abb. 5 BE-Konzentrationsprofile nach SPAR und SLIPPER	18
Abb. 6 Akkumulierte BE-Freisetzung nach SPAR und SLIPPER	18
Abb. 7 Verteilung der BE-Zentraltemperaturen	31
Abb. 8 Verlauf der mittleren GO(THTR)-BE-Kontamination im Zugabezeitraum	35
Abb. 9 Effektiver Diffusionskoeffizient für Cs-137 in Graphit	41
Abb. 10 Effektiver Diffusionskoeffizient für Sr-90 in Graphit	42
Abb. 11 Flußdiagramm der Datenaufbereitung für die AVR-Frei- setzungsrechnung	46
Abb. 12 WB-gemittelter Temperatur- und Leistungsverlauf	49
Abb. 13 Eingriff der Temperaturverteilungen in die Modell- rechnung	52
Abb. 14 Verlauf der diffusiven Coretemperatur für Cs-137	55
Abb. 15 Radiales diffusives Temperaturprofil	56
Abb. 16 Übersichtsschema des VAMPYR- und KF-Experimentes	60
Abb. 17 Schema des VAMPYR-Heißgasexperimentes	60
Abb. 18 Spezifische Aktivitäten der VAMPYR- und KF-Experimente	66
Abb. 19 Verlauf des Cs-137- und Sr-90-Inventars	70
Abb. 20 Verlauf der BE-Typen-Anteile	71
Abb. 21 Verlauf der BE-Typen-Anteile im AC	72
Abb. 22 Verlauf der BE-Typen-Anteile im IC	72
Abb. 23 Verlauf der Cs-137-Kühlgasaktivität	75
Abb. 24 Verlauf der Sr-90-Kühlgasaktivität	75
Abb. 25 Normierte Cs-137-Kühlgasaktivität	76
Abb. 26 Normierte Sr-90-Kühlgasaktivität	76
Abb. 27 Kühlgasaktivität als Funktion der diffusiven Core- temperatur im Zeitraum der VAMPYR-Versuche	80

	Seite
Abb. 28 Cs-137-Kühlgasaktivitätsverlauf der BE-Typen	92
Abb. 29 Cs-137-Kühlgasaktivitätsanteil der BE-Typen	92
Abb. 30 Sr-90-Kühlgasaktivitätsverlauf der BE-Typen	93
Abb. 31 Sr-90-Kühlgasaktivitätsanteil der BE-Typen	93
Abb. 32 Verlauf der mittleren und maximalen Cs-137-FR-Werte	97
Abb. 33 Verlauf der mittleren und maximalen Sr-90-FR-Werte	97
Abb. 34 Verlauf der akkumulierten Cs-137-Aktivität	104
Abb. 35 Verlauf der akkumulierten Sr-90-Aktivität	104
Abb. 36 Verlauf der Cs-137-IC-,AC-Kühlgasaktivität	106
Abb. 37 Verlauf der Sr-90-IC-,AC-Kühlgasaktivitätsanteile	106
Abb. 38 Lage des VAMPYR-Meßrohres im Rechenmodell	107

1 EINLEITUNG

Die Forderungen nach einem wirtschaftlichen, die Ressourcen schonenden Einsatz der Primärenergieträger Kohle, Öl und Gas, steigende Uranpreise sowie ein geschärftes öffentliches Sicherheits- und Umweltbewußtsein geben der weiteren Entwicklung des Hochtemperaturreaktors (HTR) ein besonderes Gewicht.

Als Vertreter eines fortgeschrittenen Reaktorsystems vereint er sparsame Ausnutzung des eingesetzten Brennstoffes mit der Realisierung hoher, d.h. wirtschaftlicher Kühlgastemperaturen. Er zeichnet sich durch ein ebenso breites Sicherheitspotential wie technologisches Anwendungspotential aus /1/.

Diese Vorzüge hat der AVR-Versuchsreaktor in zehnjährigem Betrieb unter Beweis gestellt. Beispielhaft wären zu nennen die Steigerung der Kühlgastemperatur auf 950 °C oder die eindrucksvolle Simulation eines typischen HTR-Störfalles: Der Ausfall der Kernkühlung mit gleichzeitigem Versagen aller Abschalteinrichtungen. Daneben erreichte der Reaktor die für eine Versuchsanlage ungewöhnlich hohe mittlere Zeitverfügbarkeit (1967 - 1976) von 78%.

Was die Ziele des AVR-Projektes anbelangt, so standen in den Anfangsjahren die Demonstration der Machbarkeit des Kugelhaufenkonzeptes sowie ein ungestörter und sicherer Betrieb im Vordergrund. Der erfolgreiche Demonstrationsbetrieb ermöglichte es, neue Entwicklungsziele verstärkt weiterzuverfolgen. Hierunter fallen die Massenerprobung unterschiedlicher Brennelementchargen und gezielte Versuche zur Bestimmung des Spaltproduktfreisetzungs- und Ablagerungsverhaltens aus einem HTR. Diese Schwerpunktverlagerung ist die Antwort auf die verschärften sicherheitstechnischen und betrieblichen Anforderungen an moderne Leistungsreaktoren, die auf eine weitere Reduzierung der radiologischen Umweltbelastung hinzielen.

Unter dem Blickwinkel der weiteren HTR-Entwicklung in der Bundesrepublik Deutschland, die sich neben der nuklearen Prozeßwärme verstärkt

auf die Einkreisanlage mit Gasturbine (HHT-Projekt) konzentrieren wird, kommt derartigen Versuchen eine besondere Bedeutung zu. Mit ihnen können erstmals realistische Freisetzungs- und Ablagerungsmessungen hinsichtlich der absoluten Spaltproduktfreisetzungsrates und der integral abgelagerten Spaltproduktmenge durchgeführt werden. Daraus ergibt sich ein erster Ausblick auf die Kontamination von Primärkreislaufkomponenten und die zu erwartende Dosisleistung von HTR-Anlagen.

Eine genauere Ermittlung der Spaltproduktfreisetzung künftiger HTR-Konzepte ist allein mit Hilfe von Rechenprogrammen möglich, die die Besonderheiten der entsprechenden Entwürfe berücksichtigen. Die bisher an Bestrahlungsexperimenten erprobten Programme konnten jedoch nicht für die Nachrechnung der coreintegralen AVR-Messungen eingesetzt werden, da die komplexe AVR-Corestruktur nicht erfaßt wurde. Mit der Erstellung eines hierfür geeigneten Rechenprogrammes und dessen Einsatz bei der Nachrechnung der Caesium- und Strontiumfreisetzung aus dem AVR-Core können erstmals errechnete und gemessene HTR-Freisetzungen gegenübergestellt werden.

Der Vergleich mit den Meßwerten gibt Hinweise auf die Güte des Rechenmodells und der Basisdatensätze sowie auf die Qualität der bisher durchgeführten Konzeptstudien zur HTR-Spaltproduktfreisetzung.

In diesem Sinne soll die Arbeit einen Beitrag zur Verbesserung der Freisetzungsrechnung künftiger Hochtemperaturreaktoren liefern.

2 AUFBAU DES AVR-FREISETZUNGSRECHENMODELLS

2.1 Eigenart der AVR-Freisetzung

Die quantitative Bestimmung der zeitlichen AVR-Spaltproduktfreisetzung aus dem Core erfordert das numerische Zusammenwirken zweier Rechenprogramme:

- Das nukleare Rechenprogramm AVR-70 /2/ legt den zeitlich abhängigen Abbrand-Umwälzzustand des Cores fest. Er wird durch eine örtliche Leistungs-, Temperatur- und Abbrand-Verteilung der Kugeltypen charakterisiert.
- Das Spaltprodukt(SP)-Diffusionsprogramm SLIPPER /3/ berechnet auf dem Hintergrund der jeweiligen Abbrand-Umwälzcharakteristik den entsprechenden Freisetzungsanteil, der durch die eingehenden Materialdiffusionsdaten mitbestimmt wird.

Durch die Integration des Diffusionsprogramms SLIPPER in das AVR-70-Nachrechnungsmodell wird die spezifische Eigenart des AVR bzw. THTR-300 als Mehrfachdurchlauf-Reaktor im Vergleich zum Einfachdurchlauf-Reaktor ($\hat{=}$ OTTO) für die Freisetzungsrechnung berücksichtigt.

Kennzeichnend für diese Eigentümlichkeit ist die Orts-Abbrandverteilung $n_1^{(k)}(\theta)$ der Kugeltypen (k = Kugeltyp, l = Regionsindex, n = Kugelanzahl, θ = Abbrandkoordinate). Beim OTTO-Reaktor hat $n_1(\theta)$ - ohne Typenunterscheidung - die Form $n_1 \cdot \delta(\theta - \theta_1)$, d.h., alle Brennelemente in der Region l liegen im gleichen Abbrandzustand vor. Im AVR überdeckt $n_1(\theta)$ ein Abbrandintervall $\Delta\theta \neq 0$. Hier existiert eine Kugelabbrandverteilung, die von der frischen bis zur am stärksten abgebrannten Kugel reichen kann.

Diese heterogene, ortsabhängige Abbrandverteilung, die durch die gezielte, vom Abbrandzustand des einzelnen Brennelementes (BE) abhängige Wiederzufuhr aufs Core verursacht wird, verhindert eine regionspauschale Homogenisierung der Nuklidvektoren; sie erfordert vielmehr

eine Unterscheidung der Brennelemente entsprechend ihrem Abbrand in sog. Abbrandklassen. Diese, zunächst für das Abbrand-Umwälzverfahren wichtige Unterteilung wird nun in die Freisetzungsrechnung übertragen, um die abbrand- und umwälzabhängige Freisetzung realistisch zu erfassen.

Im folgenden wird der Aufbau der beiden Programmteile und ihre Kopplung beschrieben.

2.2 Der nukleare Programmteil FIMEX

Die Simulation des stationären Reaktorbetriebes bei instationärer Beschickung erfolgt mit dem Programm FIMEX /4/. Dieser für die AVR-Nachrechnungen verwendete Programmodul des AVR-70-Rechenmodells beschreibt folgende mit dem Reaktorbetrieb verbundenen Vorgänge:

1. Beschickung
2. Kugelfließen
3. Kugelabbrand

Erst die genaue Festlegung dieser Bereiche macht eine sinnvolle Freisetzungsnachrechnung möglich, da u.a. über diese Größen die ortsabhängige Abbrand-Umwälzverteilung und somit das Spaltproduktinventar sowie die BE-Typen-Leistungen festgelegt werden. Mit dem Programm FIMEX werden die Punkte 1 und 2 für die Freisetzungsrechnung vollständig übernommen, während der Kugelabbrand durch die Berücksichtigung nur eines Spaltproduktes vereinfacht wurde.

2.2.1 Beschickung und Kugelfließen

Die Bereiche Beschickung und Kugelfließen simulieren das gesamte Umwälzgeschehen des Reaktors und beschreiben die Vorgänge der BE-Abbrandunterscheidung, der Ausschleusung, der Wiedierzufuhr auf und des Durchlaufs durch das Core. Die Fahrvorschrift, nach der die Vorgänge ablaufen und die das gesamte Kugelmanagement umfaßt, wird als

Beschickungsstrategie bezeichnet. Sie wurde im Laufe der Reaktorfahrt aus betrieblichen Gründen mehrfach geändert /4/.

Zwischen Zufuhr und Entnahme der Brennelemente liegt der Durchlauf durch das Core. Dieser scheinbar kontinuierliche Fließprozeß ist in der Betriebswirklichkeit jedoch nur quasi-kontinuierlich und wird in einem diskreten Rechenmodell durch ein vertikales Umladen (Shuffling) von Kugelpaketen nachempfunden. Die Theorie des AVR-Fließmodells ist in /5/ ausführlich wiedergegeben, so daß hier nur einige im Hinblick auf die Freisetzungsrechnung wichtige Punkte genannt werden.

Mit Hilfe der in Laborexperimenten ermittelten Bahn- und Absinkkurven wird die AVR-Kugelschüttung in rotationssymmetrische benachbarte Absinkkanäle eingeteilt, die durch geeignet definierte Mittelwerte, wie Absinkgeschwindigkeit und Durchlaufzeit, beschrieben werden. Die eigentliche Diskretisierung besteht in der Aufteilung jedes Kanalvolumens V_i in n_i gleich große Teilvolumina v_i , die Regionen. Kugeln einer Region sind beim simulierten Umwälzprozeß von ihrer Lage her nicht unterscheidbar.

Als kleinster Umwälzschritt kann das sogenannte Wiederbeladungsvolumen V_{WB} , mit $n_{WB} = 7200$ Kugeln, umgeladen werden, wobei Kugelabzug und Kugelzufuhr zu gleichen Zeiten und mit gleichen Geschwindigkeiten durchgeführt werden. Im Rechenmodell wird der Ablauf des betrieblichen Umwälzens in Wiederbeladungsintervallen ($\hat{=}$ WB) mit je n_{WB} Kugeln gemessen.

Die zeitliche Länge einer WB schwankt entsprechend dem Reaktivitätsvorrat und liegt im Mittel bei etwa 12 d. Die Folge der WB (Wiederbeladungszeitschritte) stellt somit eine auf der Basis der Vollastfahrweise ermittelte Zeitskala dar. Ihre Zuordnung zur Betriebszeit erfolgt über die Zahl der umgewälzten Kugeln.

In Abb. 1 ist die Coreaufteilung für das AVR-Rechenmodell dargestellt. Es enthält 5 vertikale Fließkanäle mit zusammen 100 Regionen.

Jeder Region ist entsprechend ihrem Umwälzzustand eine BE-Typ-Verteilung und eine im folgenden beschriebene Abbrandverteilung zugeordnet.

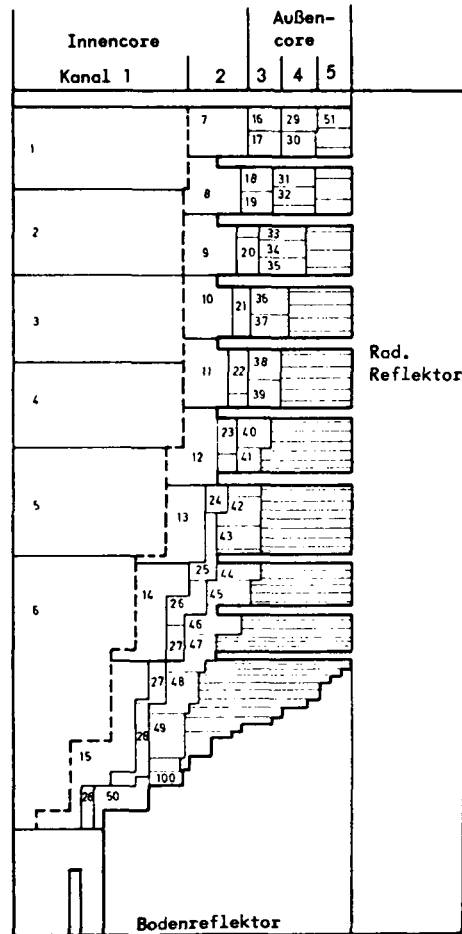


Abb. 1: Regionsverteilung des AVR-Cores

2.2.2 Die Abbrandrechnung

In der Abbrandrechnung wird die Isotopenkonzentration in den Core-regionen zeitabhängig verfolgt. Im Gegensatz zu den üblichen Spektral-Abbrandprogrammen, die im Hinblick auf eine genaue Neutronenflußverteilung alle wichtigen neutronenabsorbierenden und -produzierenden Isotopenketten verfolgen, wird für die Freisetzungsrechnung nur der Aufbau des jeweiligen Spaltproduktes (Freisetzungsisotop) und seiner Vorläufer betrachtet. Dies setzt die Übernahme genauer

Flußverteilungen und Wirkungsquerschnitte aus anderen Programmen voraus (siehe Kapitel 3.2).

Damit reduziert sich die Isotopenkette auf

- die Schwermetalle als Spaltquelle,
- das Freisetzungsisotop und die Vorläufer.

2.2.2.1 Die Schwermetallkette

Für die Schwermetallkette wird entsprechend /5/ die im HTR-Bereich übliche Struktur des Th-U-Zyklus verwendet. Die Erfassung der 12 Schwermetalle im Hinblick auf Verkettungsverlauf und Genauigkeit der Wirkungsquerschnitte bestimmen sowohl das Spaltproduktinventar als auch die errechneten BE-Leistungen. Beide gehen entscheidend in die Freisetzungsrechnung ein.

2.2.2.2 Die Spaltproduktkette

Sie umfaßt das Freisetzungsisotop und die häufig gasförmig auftretenden Vorläufer. Die Erfassung von Vorläufern ist für die Abbrandbehandlung unproblematisch, da dies nur der Lösung einer weiteren Differentialgleichung bedarf; für die Freisetzungsrechnung hingegen führt die Berücksichtigung eines Vorläufers zu einem erhöhten Aufwand an Numerik, Speicherplatz und Rechenzeit. Er sollte deshalb, wenn möglich, dem Freisetzungsisotop zugeschlagen werden.

In Abb. 2 ist die vereinfachte Kettenstruktur der interessierenden Cs- und Sr-Isotope dargestellt /6/. Sr-90 kann in seiner Bildung von Sr-89 völlig entkoppelt werden, da die β^- -Zerfallsrate des Sr-89 sehr viel höher ist als seine Neutronenabsorptionsrate. Bei einem mittleren Neutronenfluß im Core $\bar{\Phi} = 1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ beträgt das Verhältnis zwischen Zerfall und Neutroneneinfang

$$\frac{\lambda_{\text{Sr-89}}}{\sigma_{\text{A Sr-89}} \cdot \bar{\Phi}} = 1,2 \cdot 10^4 .$$

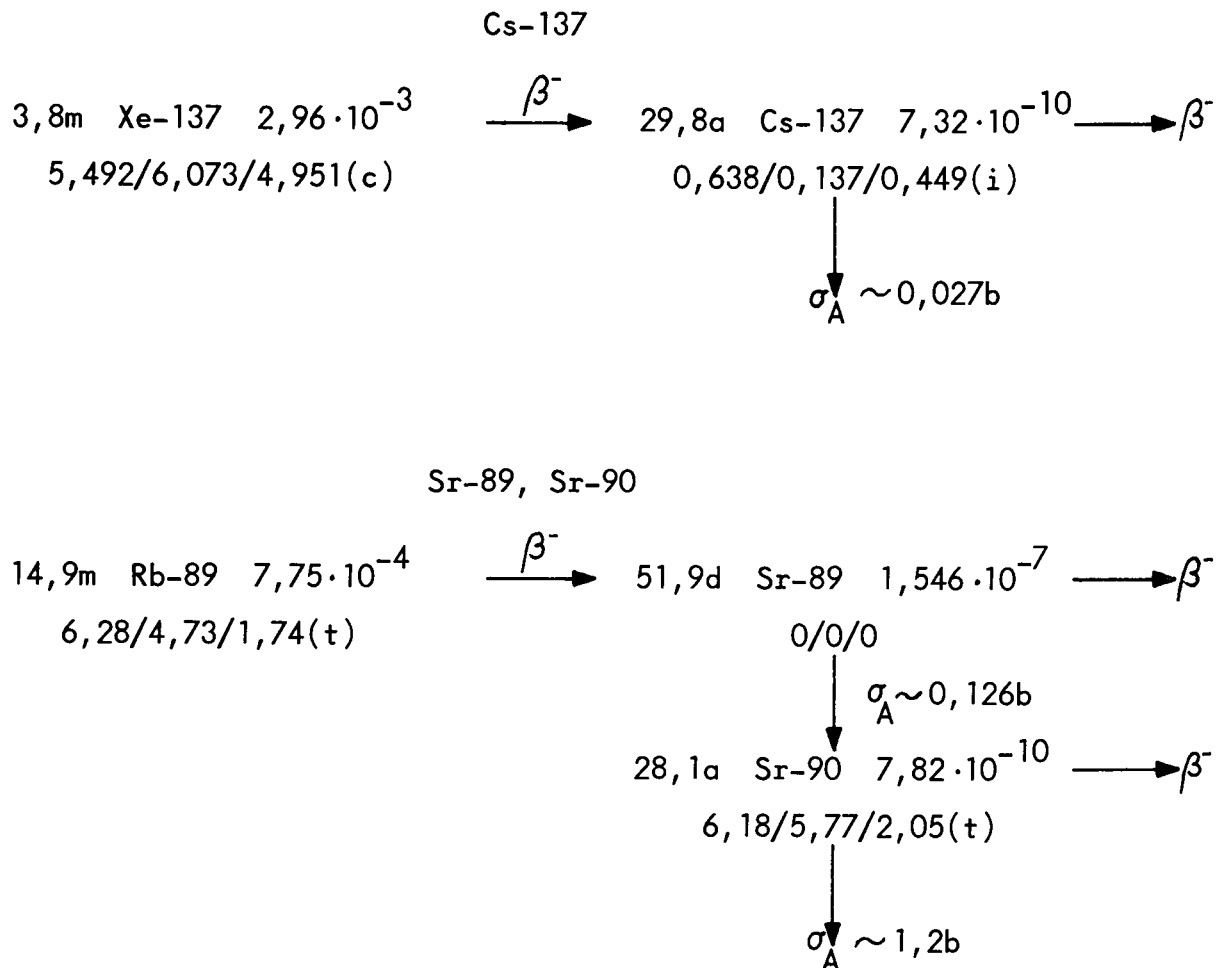


Abb. 2: Vereinfachte Cs- und Sr-Kettenstruktur

Cs-137 ist neben seiner Bildung aus der Spaltung ein Zerfallsprodukt des kurzlebigen Edelgases Xe-137. Nur der 10^{-6} te Teil des Xe-137-AVR-Gleichgewichtsinventars von etwa $3,25 \cdot 10^{19}$ Atomen wird jedoch als Edelgas freigesetzt, während der Rest als Cs-137 in den Brennelementen verbleibt und für die Diffusion zur Verfügung steht. Cs-137 wird somit ebenfalls ohne Vorläufer berechnet, wobei der Yield des Xe-137 dem des Cs-137 zugeschlagen wird.

2.2.3 Der Kugelabbbrand

In Kapitel 2.1 wurde bereits auf die durch den Mehrfachdurchlauf bedingte Eigentümlichkeit des AVR-Abbrands als einer ortsabhängigen Abbrandverteilung $n_1^{(k)}(\theta)$ der Kugeltypen und ihrer Einteilung in Abbrandklassen hingewiesen.

Als Maßeinheit für den Abbrand und zur Bezeichnung der Klassenbreite wird die Größe Fima (fissions per initial metal atom) /6/ gewählt. Die Fimaklasse j ist durch die Grenzen f_j und f_{j-1} definiert, der ein Nuklidvektor N_{ijkl} (i = Nuklid, j = Abbrandklasse, k = BE-Typ, l = Region) und eine BE-Abbrandverteilung n_{jkl} zugeordnet sind. Mit dem für den Zeitschritt Δt_{WB} wirksamen Regionsfluß ϕ^l und regionsabhängigen Absorptions- und Spaltwirkungsquerschnitten σ_A^l , σ_F^l kann nun in Eingruppendarstellung das Abbranddifferentialgleichungssystem für jeden Kugeltyp k in jeder Abbrandklasse θ_j und für jede Region l exakt gelöst werden. Die allgemeine Form der Abbrandgleichungen unter Berücksichtigung zweier möglicher Vorläufer durch Neutroneneinfang (A_{i2} , A_{i3}) und durch β -Zerfall aus einem Vorläufer (λ_{i1}) lautet:

- Schwermetallkette ($i \leq 12$):

$$\frac{dN_i^1}{dt} = \lambda_{i1} \cdot N_{i1}^1 + A_{i2}^1 \cdot N_{i2}^1 + A_{i3}^1 \cdot N_{i3}^1 - N_i^1 \cdot (\lambda_i + A_i^1) \quad (1)$$

- Freisetzungsisotop ($i = 13$):

$$\frac{dN_i^1}{dt} = \sum_{m=1}^{12} Y_m \cdot F_m^1 \cdot N_m^1 - N_i^1 \cdot (\lambda_i + A_i^1) \quad (2)$$

$$\text{mit } A_i^1 = \phi^1 \cdot \sigma_{A_i}^1$$

$$F_i^1 = \phi^1 \cdot \sigma_{F_i}^1$$

Die prompte Entstehung des Freisetzungsnuklides wird durch den fissionyield Y_m bestimmt.

Ein anschließender Vergleich des neuen Isotopenvektors entsprechend der Fima-Definition mit den Klassengrenzen führt zu einer Neueinordnung des Nuklidvektors und der BE-Abbrandverteilung in die Abbrandklassenstruktur, was einer Verschiebung des BE-Abbrandzustandes und damit der BE-Verteilung gleichkommt.

Die Reduzierung der Ketten auf 12 Schwermetalle und ein Freisetzungsisotop führt zu einer Verkleinerung des Differentialgleichungssystems und macht eine explizite, analytische Lösung möglich, die der Rechenzeit des Programms zugute kommt.

Abb. 3 stellt den U-235- und U-233-Spaltstoffverlauf für den Zeitraum der VAMPYR-Versuche dar, der mit dem Nachrechnungsmodell FIMEX und dem für die Freisetzungsrechnung vereinfachten Gleichungssystem berechnet wurde. Der vereinfachte Abbrandteil berechnet um weniger als 1% höhere Spaltstoffmassen bei einem völlig parallelen Verlauf, so daß eine hinreichende Übereinstimmung der Abbrandteile gewährleistet ist.

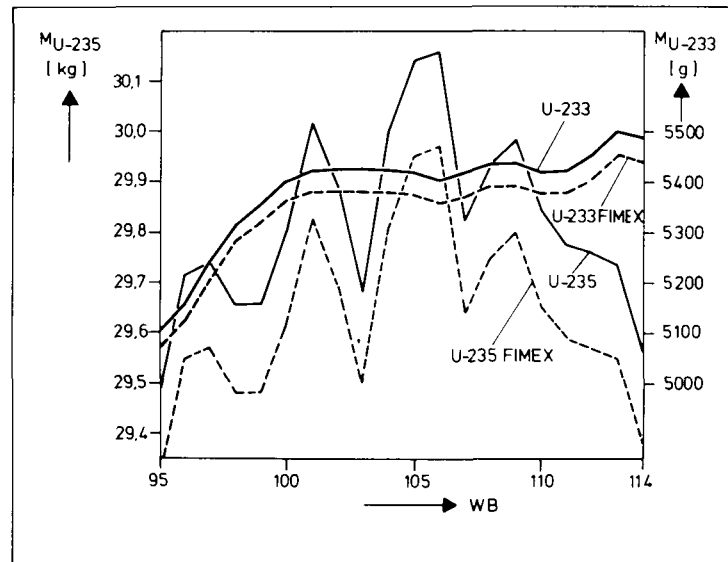


Abb. 3: Vergleich der Spaltstoffverläufe U-235 und U-233
(Nullpunkt unterdrückt)

2.3 Das Spaltproduktfreisetzungsprogramm SLIPPER

Zur theoretischen Vorherbestimmung der Spaltproduktfreisetzung aus HTR-Brennelementen steht das eindimensionale Diffusionsprogramm SLIPPER zur Verfügung.

Dieses sehr flexible Rechenprogramm löst die instationäre Transportgleichung numerisch für eine Vielzonenkugel-, Zylinder- oder Platten-

geometrie und wird mit gutem Erfolg für die Nachrechnung der Bestrahlungsgeschichte einzelner Partikel und kugelförmiger Brennelemente /8/ eingesetzt. Darüberhinaus erlaubt es, Freisetzungsrechnungen für Reaktorcores mit kugel- oder blockförmigen Brennelementen /9/ durchzuführen. Das Reaktorcore wird dazu in eine Anzahl volumengleicher Beladungszonen unterteilt, in denen für ein repräsentatives Brennelement die Freisetzung als Funktion der Leistung und Temperatur zeitabhängig berechnet wird. Diese Art der Freisetzungsrechnung ist solange sinnvoll, wie die Gesamtheit der betrachteten BE örtlich im gleichen Abbrandzustand entsprechend dem OTTO-Prinzip vorliegt.

Damit liegt die Grenze des SLIPPER-Codes dort, wo die Problematik der Freisetzungsrechnung für den AVR beginnt: bei der in Kapitel 2.1 beschriebenen örtlich heterogenen Abbrand-Umwälzcharakteristik des AVR-Cores.

Die Anpassung und Erweiterung des SLIPPER-Codes an diese komplexen Verhältnisse betrifft jedoch nur zum geringen Teil das der SLIPPER-Version zugrunde liegende theoretische Modell, so daß im folgenden zunächst das SLIPPER-Rechenprogramm vorgestellt und anschließend seine Integration in das AVR-70-Modell beschrieben wird.

2.3.1 Das mathematische Modell

Grundlage zur Berechnung von SP-Transport und -Freisetzung ist die aus der Boltzmann-Gleichung entstehende Diffusionsgleichung (DG).

Unter Voraussetzung einer isotropen Diffusion läßt sich die Diffusionsgleichung eindimensional als Massenbilanzgleichung an einem Volumenelement dV wie folgt darstellen:

$$\frac{\partial c(t,r)}{\partial t} = D(T) \operatorname{div} \operatorname{grad} c(t,r) - \lambda \cdot c(t,r) + B(t,r) ; \quad (3)$$

mit λ Zerfallskonstante $[s^{-1}]$,
 $D(T)$ Diffusionskoeffizient $[cm^2/s]$,
 T Temperatur $[K]$,
 $c(t,r)$ zeitlich-örtliche SP-Konzentration $[cm^{-3}]$.

Dabei haben die einzelnen Terme folgende Bedeutung:

$$L = D(T) \operatorname{div} \operatorname{grad} c(t,r)$$

beschreibt die Leckage des SP-Nuklids aus dem Volumenelement durch Diffusion. Diese wird bestimmt durch den temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten $D(T)$. Das dem BE aufgeprägte Temperaturprofil ist seinerseits abhängig vom Abbrandzustand des BE und seiner räumlichen Lage im Core.

$$Z = \lambda \cdot c(t,r)$$

vermindert die Nuklidkonzentration aufgrund seines radioaktiven Zerfalles.

$$B = B(t,r)$$

ist der zeit- und ortsabhängige Quellterm (Birth). Die Höhe von B wird entsprechend dem BE-Abbrandzustand durch das Schwermetallinventar und die Uran-Kontamination festgelegt.

Zur Errechnung der BE-Freisetzung wird Gleichung (3) über das BE-Volumen integriert:

$$\int_{V_{BE}} \frac{\partial c}{\partial t} \cdot dV = \int_{V_{BE}} D \cdot \operatorname{div} \cdot \operatorname{grad} c \cdot dV - \lambda \int_{V_{BE}} c \cdot dV + \int_{V_{BE}} B \cdot dV . \quad (4)$$

Die Integration mit Hilfe des Gaußschen Satzes wandelt das Volumenintegral des Leckageterms in ein Oberflächenintegral um, so daß nun für die Freisetzung R geschrieben werden kann:

$$R = -D \cdot \int_{0_{BE}} \text{grad } c \cdot dF_{BE} = \int_{V_{BE}} B \cdot dV - \lambda \cdot \int_{V_{BE}} c \cdot dV - \int \frac{\partial c}{\partial t} \cdot dV \quad (5)$$

Die den variablen Geometrien angepaßte SLIPPER-DG wurde allein für die Kugelgeometrie nach einer gegenüber /3/ modifizierten, Rechenzeit sparenden Methode gelöst.

Die vereinfachte numerische Behandlung der DG findet sich in /10/.

Neben der absoluten Freisetzungsrates werden aus Gründen der Anschaulichkeit und Vergleichbarkeit R/B- und FR-Werte definiert.

Gl. (6) beschreibt - als Verhältnis der Freisetzungs- zur Erzeugungsrate - die stationäre, Gl. (7) - als Verhältnis der Zeitintegrale von Freisetzungs- und Erzeugungsrate - die instationäre Freisetzung.

Es ist (vergl. 2.2.3):

$$\frac{R}{B} = \frac{-D \int_{0_{BE}} \text{grad } c \cdot dF}{\sum_{l=1}^{100} \phi^l \cdot \sum_{m=1}^{12} F_m^l \cdot N_m^l} \quad (6)$$

$$FR = \frac{\int_0^t R \cdot e^{-\lambda \cdot t} d\tau}{\int_0^t B \cdot e^{-\lambda \cdot t} d\tau} \quad (7)$$

mit t als Betriebszeit des Reaktors.

2.3.2 Der Programmablauf

Eine ausführliche Programmablaufbeschreibung des SLIPPER-Codes findet sich in /3/, so daß an dieser Stelle eine kurze Darstellung ausreicht. Ausgangspunkt der SLIPPER-Rechnung sind die Temperaturverteilung und

Leistung des Brennelementes. Zur Vorbereitung der Diffusionsrechnung wird das Brennelement in Zonen eingeteilt, die u.a. durch ihre Anzahl an coated particles (CP) und durch die als homogen verteilt angenommene Schwermetallverschmutzung (Kontamination) gekennzeichnet sind.

BE und CP werden mit einem Feinpunktmaschennetz überzogen (Unterprogramm GEODAT), dem anschließend Brennelement-Zonen- und -Feinpunkttemperaturen zugeordnet werden (Unterprogramm TEMPER). Die Feinpunkttemperaturen sind bestimmend für den Wert des örtlichen Diffusionskoeffizienten, während die mittleren Zonentemperaturen ihrerseits als Oberflächentemperatur für das zonenrepräsentative Partikel dienen. Entsprechend der Aufeinanderfolge des Diffusionsablaufes, und dem BE-Zonaufbau folgend, wird abhängig von Partikelleistung, Kontaminationsverlauf und Recoilbeitrag der räumliche CP-Quellterm und die CP-Fein-temperaturverteilung ermittelt (Unterprogramm DIFFCP, TEMPER). Dies sind die Eingangsgrößen für die eigentliche CP-Diffusionsrechnung, in deren Ablauf die neuen ortsabhängigen CP-Konzentrationsprofile und die Partikelfreisetzung unter der Annahme des ungehinderten Übertritts des Spaltprodukts in die jeweilige Matrixzone errechnet werden (Unterprogramm DIFFUS). Multipliziert mit der CP-Zahl je Zone ergibt sich die CP-Gesamtfreisetzung (Unterprogramm DIFFUS).

Abschließend wird die Diffusion durch das BE bis zur Oberfläche behandelt. Die wiederum notwendige räumliche BE-Quellverteilung ergibt sich als Summe aus Diffusions- und Recoilfreisetzung sowie des örtlichen Schwermetallkontaminationsanteiles (Unterprogramm DIFFBE). Wie für die Partikel wird im letzten Schritt die BE-Konzentrationsverteilung und -Freisetzung am Ende des Zeitschrittes errechnet (Unterprogramm DIFFUS). Die Randbedingung für die Kugeloberfläche wird aus Massenübergangszahl und Adsorptionsisotherme bestimmt (Kapitel 3.1.5.3). Dieser Vorgang muß für jeden Abbrand-Umwälzzeitsschritt wiederholt werden.

2.4 Das AVR-Freisetzungsprogramm

Aufgrund des komplexen AVR-Coreaufbaues müssen an ein entsprechendes Freisetzungsmodell folgende Forderungen gestellt werden:

1. Berücksichtigung der heterogenen, ortsabhängigen Abbrandverteilung in der Freisetzungsrechnung.
2. Erfassung der Brennelementrückführung unter dem Aspekt der Freisetzung.
3. Berücksichtigung aller im Core befindlichen BE- und CP-Typen. Die Eigenart des AVR als Testbettreaktor macht eine Unterscheidung der coated particles nach Typen erforderlich, z.B. bei den GLE- und GFB-BE.

Die Verwirklichung der Forderungen 1 - 3 läßt sich an den Beispielen von Gleichung (5) und (7) bei der Berechnung der Freisetzung und des FR-Wertes darstellen.

2.4.1 Die Einbindung des SLIPPER-Codes in das AVR-Nachrechnungsmodell

Wie die rechte Seite der Gleichung (5) zeigt, sind der Quellterm B und die Konzentration c des Spaltproduktes bestimmend für die Höhe der Freisetzung.

Um den obengenannten Forderungen gerecht zu werden, muß eine orts-, abbrand- und typenabhängige Konzentrationsverteilung $c_{jkl n}$ definiert werden, wobei k wahlweise die CP- bzw. BE-Abhängigkeit darstellt und n die Stützpunktzuordnung im CP- bzw. BE-Feinpunktmaschennetz wiedergibt. Der Quellterm B dagegen wird hauptsächlich durch den schon eingangs definierten Nuklidvektor N_{ijkl} ($i = 13$) bestimmt. Die so berechnete Freisetzung R ist ihrerseits orts-, abbrand- und typenabhängig - R_{jkl} - und kann in Gleichung (7) für die Berechnung des typabhängigen FR-Wertes verwendet werden.

Die Rechnung wird durch eine Neueinordnung der abbrandklassenabhängigen Freisetzungsmittelwerte in die Abbrandklassenstruktur abgeschlossen.

Die Berücksichtigung der Rückführung teilabgebrannter, rezyklierter Brennelemente erfolgt über eine Zuordnung der bekannten Freisetzungs- und SP-Konzentrationsverteilungen der untersten Kugelabzugsrohrregion zu den der fünf oberen Coreregionen. Dabei ist zu beachten, daß durch eine kleine Bemessung der ersten Abbrandklasse ($f_1 \leq 1,5\% \text{ fima}$) der durch die Mittelung frischer und teilabgebrannter Freisetzungsverteilungen entstehende Informationsverlust so gering wie möglich gehalten wird. Das erste Fima-Intervall sollte deshalb deutlich kleiner als der minimal erzielbare Abbrand sein, den ein frisches Brennelement beim einmaligen Coredurchlauf auf der kürzesten Absinkkurve erreichen kann, um die erste Abbrandklasse der Freisetzungsverteilungen für frische BE zu reservieren.

Unter Beachtung der obigen Regeln wurde der SLIPPER-Code mit dem AVR-Modul FIMEX gekoppelt. Das neu entstandene Programm erlaubt die Durchführung von Spaltproduktaustrittsrechnungen für alle Mehrfachdurchlauf-Reaktoren. Die guten Freisetzungseigenschaften der Hochtemperaturreaktoren legen den Programmnamen SPAR nahe.

Das Flußdiagramm der Abb. 4 zeigt im Detail die Einbindung des Freisetzungsteils in das AVR-Nachrechnungsmodell und verdeutlicht die Verknüpfungspunkte.

In einer abschließenden Vergleichsrechnung mit den Programmen SPAR und SLIPPER wurde deren Übereinstimmung überprüft. Ein definiertes Brennelement wurde unter identischen Temperatur- und Leistungsbedingungen in einem Zeitintervall von 830 Tagen abgebrannt und die Freisetzung berechnet: Abb. 5 und 6 stellen die errechneten BE-Konzentrationsprofile am Ende des Zeitintervalls und den Verlauf der akkumulierten Freisetzung gegenüber.

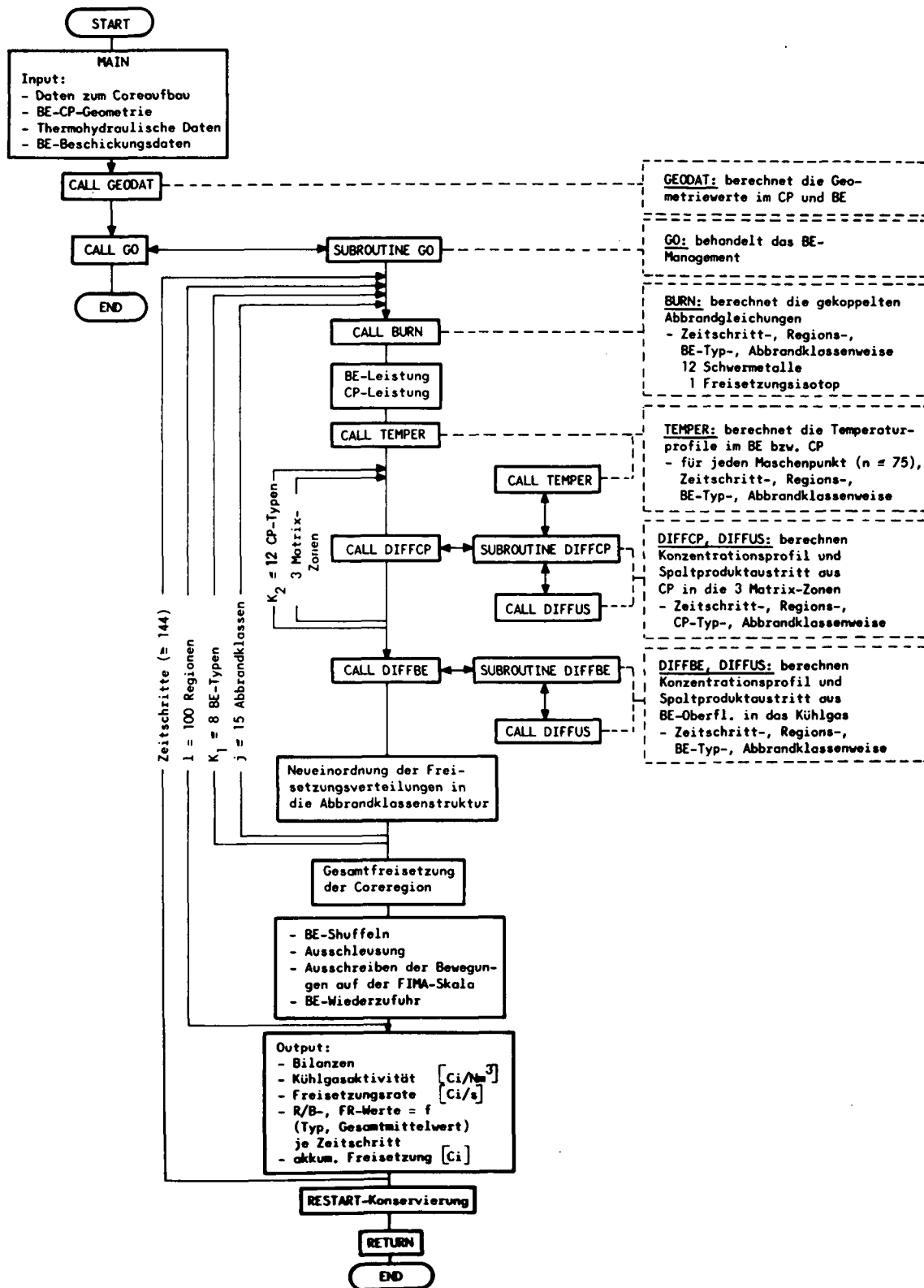


Abb. 4: Flußdiagramm des AVR-Freisetzungsprogramms

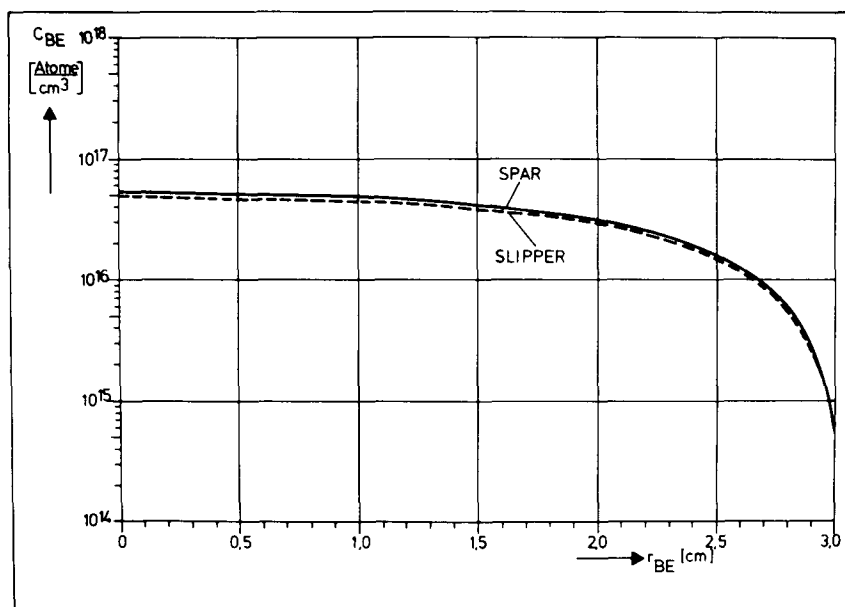


Abb. 5: BE-Konzentrationsprofile nach SPAR und SLIPPER

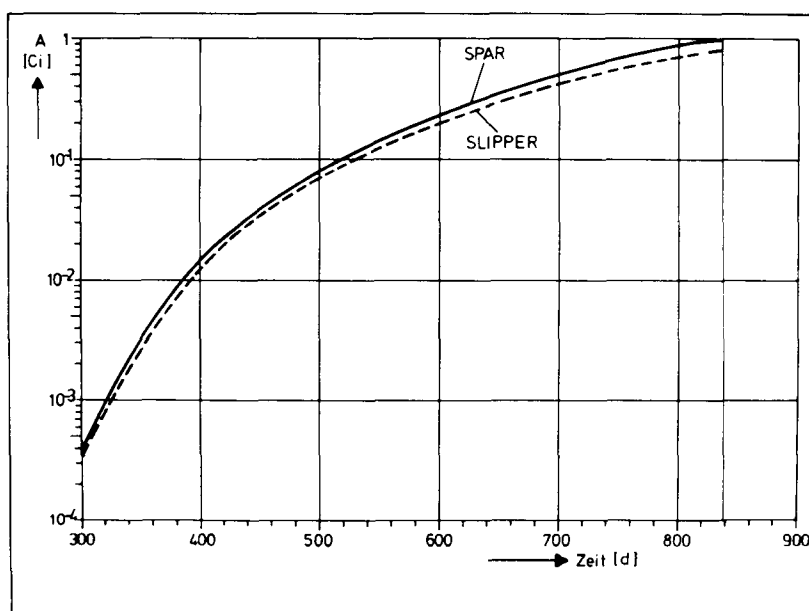


Abb. 6: Akkumulierte BE-Freisetzung nach SPAR und SLIPPER

Die Konzentrationsprofile stimmen mit einer Abweichung von weniger als 1% überein, während die in SPAR errechnete akkumulierte Freisetzung um etwa 15% höher liegt. Dies beruht auf der vereinfachten Lösungsmethode der DG, die den Konzentrationsvektor nur im Mittelpunkt des Maschennetzes, jedoch nicht auf dessen Grenzen berechnet. Die Folge ist eine leichte Überschätzung der BE-Oberflächen-Grenzkonzentration und der errechneten Freisetzung.

2.4.2 Anwendungsbereich von SPAR

Das Programm SPAR berechnet seiner Konzeption nach die Spaltproduktfreisetzung für alle Arten von Kugelhaufenreaktoren, ist jedoch dank seines Shufflingteils für solche mit Mehrfachbeschickung, wie AVR und THTR-300, besonders geeignet.

Sein Anwendungsbereich liegt zum einen

- in der betriebsbegleitenden Nachrechnung und
- in der kontrollierenden Vorausrechnung

der Normalbetriebsfreisetzung (NBF), zum anderen liefert SPAR

- Freisetzungsabschätzungen im Störfall.

In der NBF-Rechnung steht die möglichst repräsentative Erfassung der Freisetzung an erster Stelle. Diese wird erreicht durch Berücksichtigung regionsabhängiger Neutronenflüsse, Wirkungsquerschnitte und Kühlgas- bzw. BE-Oberflächentemperaturen. Sie können entsprechend der Betriebsfahrweise und ihrer Rückwirkung auf die nuklearen und thermodynamischen Betriebsparameter für jeden Zeitschritt verändert werden. Die hierbei auftretenden Probleme der Datenbeschaffung und -behandlung werden in Kapitel 3.2 behandelt.

Als Quelle der Spaltproduktfreisetzung müssen die Brennelemente in erster Linie nach Freisetzungskriterien und in zweiter Linie als Leistungserzeuger beurteilt und eingeordnet werden. So werden z.B. die mit zwei Partikelsorten eingesetzten Feed-Breed-Brennelemente

(GFB-BISO, GFB-TRISO), obwohl identisch in der Leistungscharakteristik, als zwei BE-Sorten behandelt. Der Einsatz von SPAR für zukünftige Nachrechnungen muß diesen Gesichtspunkt verstärkt berücksichtigen.

Unter kontrollierender Vorausrechnung wird die Ermittlung der SP-Freisetzung bei geplanten Veränderungen der Gasaustrittstemperatur verstanden. Ausgangspunkt ist ein definierter Abbrand-Umwälzzustand, dem eine der vorgesehenen Gasaustrittstemperatur entsprechende Temperaturverteilung überlagert wird. Unter Berücksichtigung der zukünftigen Beschickungsstrategie kann die zu erwartende Freisetzung verfolgt werden.

Die Freisetzung im Störfall wird bestimmt durch den Temperaturverlauf im Core. Mit SPAR kann die zeitabhängige Spaltproduktfreisetzung aus dem Gesamtc core bei gegebener, quasistationär aufgelöster Temperaturtransiente ermittelt werden. Für den Zeitraum des Störfalls wird ein stationäres, nicht umgewälztes Core ohne Kühlgasströmung vorausgesetzt.

Die Grenzen des Programms liegen in folgenden Punkten:

- keine Erfassung von Vorläufern,
- keine Behandlung des dosisabhängigen CP-Bruchs,
- keine Berücksichtigung der SP-Konzentration im eintretenden Kaltgas.

Wie schon in Kapitel 2.2.2.2 erwähnt, erfolgte die Beschränkung der SP-Kette auf ein Isotop aus programmtechnischen Gründen. Unter Inkaufnahme von erhöhtem Speicherplatz und höherer CPU-Zeit kann SPAR entsprechend dem Programm SLIPPER um einen Vorläufer erweitert werden.

Bei der Erstellung des Programms SPAR war die dosisabhängige CP-Bruchrate am AVR vernachlässigbar gering. Die Berücksichtigung einer Bruchkurve ist zwar als Option im Programm enthalten, wird jedoch

in den Rechnungen nicht behandelt. Das Auftreten von temperaturbedingten CP-Brüchen bei den GLE-BE aktualisierte jedoch die Erfassung von CP-Brüchen. Über eine vorzugebende CP-Bruchrate kann bei zukünftigen Rechnungen die Erhöhung des Quellterms infolge von Bruch gesteuert werden.

Die Erfassung der SP-Rückführung im Kaltgas, ihre Verteilung durch die Gasströmung und die Behinderung der SP-Abdampfung von den BE aufgrund des nun vorhandenen Partialdruckes im Kühlgas ist ein komplexer Vorgang; seine Auswirkungen sind nur qualitativ bekannt. Die Annahme einer SP-Nulleintrittskonzentration im Kaltgas ($C_E = 0$) für den Normalbetrieb führt nach /11/ höchstens zu einer Überschätzung der Freisetzung um den Faktor 2. Im Störfall kann dagegen eine verstärkte Freisetzungsbehinderung erwartet werden. In den noch vorzustellenden Rechenergebnissen ist die Annahme $C_E = 0$ und damit eine mögliche geringfügige Überschätzung enthalten.

3 ERLÄUTERUNG UND FESTLEGUNG DER MODELLPARAMETER

Voraussetzung für die Bestimmung einer repräsentativen Corefreisetzung ist die Kenntnis der Verarbeitung der eingehenden Modellparameter. Sie werden im folgenden unterschieden in

- die Freisetzung bestimmende Materialdaten,
- den Abbrand-Umwälzzustand beschreibende corephysikalische Daten,
- den Reaktorzustand kennzeichnende Betriebsdaten.

In den Bereich der materiellen Freisetzungsparemeter fallen alle Materialdaten, wie z. B. Kontamination, Wärmeleitfähigkeit und Diffusionskonstanten. Diese sind zwar strenggenommen abhängig vom Betriebszustand, z. B. Temperatur- und Dosisabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit, Abbrandabhängigkeit der Diffusionskoeffizienten, werden jedoch in dieser Arbeit als konstant angenommen.

Die corephysikalischen Daten werden durch die Betriebsanforderungen an Reaktorleistung, Kühlgastemperatur und Beschickungsstrategie festgelegt. Diese Gruppe physikalischer Größen, wie

- regionsabhängige Neutronenflüsse,
- regionsabhängige Wirkungsquerschnitte,
- Leistungsdichteverteilung,

kennzeichnet den Abbrand-Umwälzzustand des Cores und ist im Laufe der Betriebszeit z. B. durch Abbrand, durch Zugabe neuer BE-Typen, durch Reaktorbetrieb bei wechselnden Gasaustrittstemperaturen (VAMPYR-Experiment) ständigen Änderungen unterworfen.

Unter Betriebsdaten werden im wesentlichen die den Reaktorbetrieb charakterisierenden Kenngrößen, wie

- die tatsächlich gefahrene thermische Leistung,
- die mittlere Kühlgasaustrittstemperatur,
- die mittlere Kühlgaseintrittstemperatur,

- der Gasmassendurchsatz,
- die Brennelementbeschickung,

verstanden. Diese Kenngrößen unterliegen aus unterschiedlichen Gründen Schwankungen und Änderungen, die kurzfristig (mehrtägig), mittelfristig (mehrere Monate) oder langfristig (geplant) auftreten können.

Die schnellen Schwankungen ergeben sich aus den kurzfristigen Anforderungen des Betriebes und betreffen vor allem Gasein- und -austritts-temperatur bzw. den Massendurchsatz. Sie wirken nur indirekt auf die errechnete Freisetzung.

Die mittelfristigen Änderungen treten langsam auf und werden vor allem verursacht durch die kontinuierliche Umgruppierung des Cores mit seinen Auswirkungen auf die Temperaturverteilung und Freisetzung.

Die langfristigen Änderungen sind in der Regel geplante Eingriffe, die sich z. B. durch eine Leistungs- oder Kühlgastemperaturanhebung oder durch Zugabe neuer BE-Typen bemerkbar machen. Die Folge ist oft eine erhebliche Veränderung der Temperaturverteilung und der Freisetzung.

Je genauer die obigen Kenngrößen und die zugeordnete Temperaturverteilung des Cores ermittelt werden können, um so repräsentativer ist die errechnete Freisetzung. Dies gilt vor allem im Bereich der VAMPYR-Versuche, deren Meßergebnisse zum Vergleich des Rechenmodells herangezogen werden.

3.1 Festlegung der Material- und Transportdaten

Entscheidend für die Genauigkeit der Freisetzungsrechnung sind die eingehenden Material- und Transportdaten. Unter Materialdaten werden die die Freisetzung mittelbar beeinflussenden Größen, wie CP-, BE-Geometrie, Wärmeleitfähigkeit und Spaltausbeute, verstanden, während die Transportdaten die freisetzungsbestimmenden Einflüsse aus der Kontamination, den Diffusionskoeffizienten und der Aktivierungsenergie beschreiben.

Die Bestimmung und Festlegung dieser Daten konnte nicht immer mit der wünschenswerten Genauigkeit durchgeführt werden, da die Daten unter anderen Gesichtspunkten als denen der Freisetzung erstellt wurden.

3.1.1 Brennelement- und CP-Kenngrößen

Das Programm SPAR unterscheidet bis zu acht BE- und bis zu elf CP-Freisetzungstypen. Während bei den FIMEX-Beschickungs- und -Abbrandrechnungen die BE-Typen vor allem nach ihrer Schwermetallkomposition unter Einführung korrektiver Selfshieldingfaktoren kategorisiert werden, muß die Freisetzungsrechnung das Partikeldesign und die Kontamination als bestimmende Ursachen mitberücksichtigen.

Es werden unterschieden:

- U die Erstcore-Brennelemente mit Mischpartikeln der Firma UCC,
- T die Tapeten-Brennelemente,
 die gepreßten Brennelemente in den Varianten:
 - GK mit karbidischen Mischpartikeln aus Uran/Thorium,
 - GO mit oxidischen Mischpartikeln aus Uran/Thorium,
 - GLE mit niedrig angereicherten Uranoxidpartikeln (low enriched) und Natururanpartikeln,
- GFB-1 mit getrennten BISO-Abbrand- und BISO-Brutpartikeln (feed-breed),
- GFB-2 mit TRISO-Abbrandpartikeln und anderer BE-Kontamination (siehe GFB-1),
- GO(THTR) mit oxidischen Mischpartikeln aus Uran/Thorium der THTR-Fertigung.

TRISO-Partikeln unterscheiden sich durch eine zusätzlich aufgebrachte Siliziumkarbid (SiC)-Zwischenschicht von den BISO-Partikeln, die aus dem Brennstoffkern und mehreren umhüllenden HDI-Schichten aus pyrolytisch abgeschiedenem Kohlenstoff (PyC) aufgebaut sind.

Brennelementtyp Kurzbezeichnung	UCC U	Tapete T	gepreßt						Oxid GO(THTR)
			Kerbid CK	Oxid GO	niedr. angerch. GLE	feed-breed			
						GFB-1	GFB-2		
Brennstofffreie Zone			A3 - Matrix						
Außendurchmesser	mm	59,9	59,95	59,92	59,94	59,95	60,01	60,01	59,95
Schalendicke	mm	10	11	5	5	5	5	5	5
BE-Kontamination		$4,7 \cdot 10^{-4}$	$7,4 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$7,0 \cdot 10^{-4}$	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$1,6 \cdot 10^{-4}$	$4,8 \cdot 10^{-4}$
Brennstoff		(U,Th)C ₂	(U,Th)C ₂	(U,Th)C ₂	(U,Th)O ₂	UO ₂	UO ₂	UO ₂	(U,Th)O ₂
Anreicherung	%	93,2	93,0	93,0	92,3	14,94	natur	93,0	93,0
Partikelsorte		Misch-P.	Misch-P.	Misch-P.	Misch-P.	15%-P.	Natur-P.	Abbr.-P.	Misch-P.
Beschichtungsgas		BISO Methan	BISO Methan	BISO Methan	BISO Methan	BISO Propen	BISO Propen	TRISO Propen	BISO Methan
Partikelanzahl		170984	23700	23700	20800	8000	9500	24500	38600
Kerndurchmesser	µm	200	400	400	400	600	600	200	400
Buffer-Schichtdicke	µm	33	40	52	77	94	93	89	85
SIC-Schichtdicke	µm							25	
HDI-Schichtdicke	µm	77	120	120	108	80	78	84	105

Tab. 1: Freisetzungsscharakteristische Brennelement- und Coated-particle-Daten

Die wichtigsten freisetzungsscharakteristischen Daten für die Brennelement- und Coated-particle-Typen werden mit ihren Mittelwerten in Tab. 1 aufgeführt. Sie entstammen den Abnahmezeugnissen der Hersteller und wurden /12,13/ entnommen.

3.1.2 Spaltausbeute des Cs-137 und Sr-90

Die Spaltausbeute (yield) bestimmt die Höhe des Spaltproduktinventars und damit auch die Höhe des Quellterms B in der Diffusionsgleichung (Gl. 3, Kapitel 2.3.2). Da beide Isotope ohne Vorläufer behandelt werden können, wird die kumulierte Spaltausbeute (cumulative yield) Y_C für die Rechnung benutzt.

Kumulierte Spaltausbeute bezeichnet die Wahrscheinlichkeit, daß ein SP-Isotop sowohl direkt durch Spaltung (Cs-137, Sr-90) als auch durch $\bar{\beta}$ -Zerfälle und Neutroneneinfänge seiner Vorläufer (Xe-137, J-137, Rb-90, Kr-90, Br-90) entsteht.

Die in Tab. 2 aufgeführten Spaltausbeuten stimmen im wesentlichen mit denen von /6/ überein. Vergleiche mit Angaben aus /14,15/ zeigen Abweichungen von etwa 10% und liegen damit innerhalb des angegebenen Meßfehlers.

HM	Th-232 Pa-233 U-233	U-234 U-235 U-236	U-238 Np-239 Pu-239 Pu-240	Pu-241 Pu-242
Y_C Cs-137 [%]	6,38	6,2	5,3	5,3
Y_C Sr-90 [%]	6,18	5,77	2,05	1,55

Tab. 2: Spaltausbeute der 12 Schwermetalle (HM)

3.1.3 Die Wärmeleitfähigkeit

Der Temperaturverlauf im BE und coated particle bestimmt die Höhe der diffusiven Freisetzung. Für die rechnerische Ermittlung des Temperaturprofils über BE und CP müssen deshalb die Wärmeleitfähigkeiten λ der eingesetzten Materialien bekannt sein. Ausführliche Messungen am Spaltstoff UO_2 /16/ und dem A3-Graphit /17/ zeigen eine Temperatur- und Dosisabhängigkeit ($E > 0,1 \text{ MeV}$) der Wärmeleitfähigkeit. Für beide Materialien zeigt sich eine Abnahme der Temperaturabhängigkeit mit wachsenden Temperaturen ($\text{UO}_2: T > 800^\circ\text{C}$; A3-Graphit: $T > 600^\circ\text{C}$). Daneben sinkt mit zunehmender Neutronendosis der absolute Wert der Wärmeleitfähigkeit im A3-Graphit. Die funktionale Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Temperatur und Neutronenfluenz kann mit Hilfe einer zugeschnittenen Größengleichung erfaßt werden /18/.

Die Anwendung derartiger Gleichungen wird jedoch durch die bei Temperaturzyklisierung auftretenden Ausheilvorgänge beschränkt. Es ist nicht auszuschließen, daß gerade die AVR-Brennelemente mit ihrer wechselnden Leistungs- und Temperaturgeschichte diesen Effekten ausgesetzt sind.

3.1.3.1 Wärmeleitfähigkeit der beschichteten Teilchen

Für die Berechnung des Temperaturprofils in den coated particles wurden temperaturunabhängige λ -Werte gewählt. Diese Wahl ergibt sich aus der relativen Temperaturunabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit in dem die Diffusion beeinflussenden Temperaturbereich. Der mit abnehmender Temperatur stark ansteigende Wärmeleitfähigkeitskoeffizient wirkt in Richtung einer Temperaturabsenkung und damit diffusionshemmend.

In Tabelle 3 sind die für die Nachrechnung ausgewählten Wärmeleitfähigkeiten aufgeführt.

Schicht	λ [W/(cm K)]	Referenz
UO ₂ -, (U,Th)O ₂ - ThO ₂ -Kern	0,022 0,01	/19/ Zoller /20/ Wagemann
(U,Th)C ₂ - UC ₂ -Kern	0,2	/21/ McElmury
Buffer	0,02	/21/ McElmury
HDI-PyC	0,04	/19/ Zoller
SiC	0,188	/21/ McElmury

Tab. 3: Ausgewählte Wärmeleitfähigkeit in den coated particles

3.1.3.2 Wärmeleitfähigkeit der BE-Typen

Die Komposition des AVR-Kugelhaufens unterteilt sich hinsichtlich der BE-Wärmeleitfähigkeit in zwei Graphitarten.

Die Erstcore- und Tapetenbrennelemente wurden nach dem Prinzip der Graphithohlkugel aus einem Elektrographitblock spanabhebend hergestellt. Der innere Hohlraum wurde unterschiedlich für die beiden BE-Typen mit beschichteten Teilchen und einer Graphit-Bindermasse ausgefüllt. Alle restlichen Brennelementtypen wurden aus A3-Graphit gepreßt, in dessen Brennstoffzone die beschichteten Teilchen gleichmäßig verteilt sind.

Tabelle 4 zeigt die Wärmeleitfähigkeiten der unbestrahlten Graphitsorten.

BE-Typ		$\left[\frac{W}{(cm \ K)} \right]$				
		/12/		/20/		
		20 °C		1000 °C		1000 °C
		\perp		\perp		
U	ATJ-Schale	1,01	1,18			0,335
	Matrix	0,34				0,168
T	ALSW-/AMT-Schale	1,71	2,01	0,57	0,67	0,62
	3780 WEG-/PT-Schale	1,19	1,55		0,43	0,43
	Matrix					0,041
GK GO	A3-Graphit	0,59	0,67	0,34	0,36	0,28

Tab. 4: Wärmeleitfähigkeiten von Schale und Matrix der unbestrahlten Brennelemente

(||: parallel zum Korn, \perp : senkrecht zum Korn bzw. zur Preßrichtung)

Für die Freisetzungsnachrechnung wurden die λ -Werte des A3-Graphits benutzt. Dieses Vorgehen ist darin begründet, daß

- die quantitative Abnahme der Wärmeleitfähigkeit unter Bestrahlungsbedingungen für die Elektrographite nur wenig, für den A3-Graphit hingegen gut bekannt ist,
- die gepreßten BE die Erstcore- und Tapeten-Brennelemente im Leistungsanteil und in der Anzahl schon nach etwa zwei Betriebsjahren übertreffen; in Tabelle 5 sind die Änderungen des Leistungsanteils \bar{L} und des Brennelementanteils \bar{N} zusammengestellt.

Datum	U-BE		T-BE		GK-BE	
	\bar{L} [%]	\bar{N} [%]	\bar{L} [%]	\bar{N} [%]	\bar{L} [%]	\bar{N} [%]
April 1968	100	100				
Mai 1969	79	84	19	14	2	2
Dez. 1969	57	68	11	10	32	22
Mai 1970	41	57	8	8	51	35
Dez. 1970	29	47	5	7	66	46
Juni 1971	24	42	4	6	72	52

Tab. 5: Leistungs- und Brennelementanteil der eingesetzten BE-Typen für die ersten beiden Betriebsjahre /22/

Bei der Berücksichtigung der Temperatur- (T) und Dosisabhängigkeit (θ) wurde auf Rechnungen /23/ über Auswirkungen von Wärmeleitfähigkeiten mit $\lambda = f(T)$ bzw. $\lambda = \text{const}$ auf die BE-Zentraltemperatur zurückgegriffen.

Danach wirkt sich die Annahme einer temperaturabhängigen Wärmeleitfähigkeit nicht so sehr im Bereich der hohen BE-Temperaturen, sondern aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit des λ -Wertes bei den im kalten Gas liegenden BE aus. Im kalten Teil befinden sich jedoch keine frischen BE, sondern solche mit einem Abbrand zwischen 2,9 und 8,5% Fima (1. Durchlauf, 3. bis 5. Kanal). Dies entspricht typenabhängig einer empfangenen schnellen Dosis bis etwa $1 \cdot 10^{21}$ EDN/cm². Für diesen Dosisbereich ist der $\lambda(T)$ -Verlauf jedoch auch im Bereich niedriger Temperaturen stark abgeflacht, so daß der Fehler gegenüber $\lambda = \text{const}$ gering bleibt.

Die Auswirkungen von $\lambda = \text{const}$ bzw. $\lambda = f(T)$ auf die errechneten BE-Zentraltemperaturen zeigt die Abbildung 7.

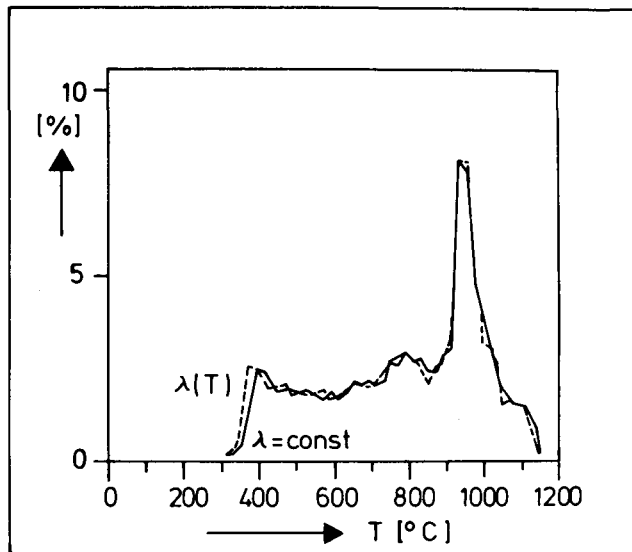


Abb. 7: Verteilung der BE-Zentraltemperaturen

Für die Nachrechnung wurde deshalb auf die Anwendung einer Wärmeleitfähigkeit $\lambda = f(T, \theta)$ im A3-Graphit verzichtet. Stattdessen wurde ein λ -Wert $\lambda = 0,22 \left[\text{W}/(\text{cm K}) \right]$ gewählt, der den speziellen Verhältnissen des AVR-Cores angepaßt ist.

3.1.4 Brennelement- und CP-Kontamination

Sowohl die coated particles als auch die Brennelemente unterliegen herstellungsbedingt einer Schwermetallverunreinigung. Der Verunreinigungsgrad, die Kontamination, wird jeweils als Verhältnis des freien Urans in der Beschichtung bzw. im BE-Graphit zum Gesamturangehalt im CP bzw. Brennelement angegeben.

Die Veröffentlichungen über Untersuchungen zur Urankontamination an beschichteten Brennstoffteilchen /24/ unterscheiden zwei Bildungsursachen:

- Verschmutzung der Beschichtung durch Schwermetалldiffusion aus dem Brennstoffkern während des Beschichtungsvorganges bei Temperaturen bis 2100°C ,
- Einbau von Schwermetall in die Hüllschichten über den hohen Uran-Partialdruck im Beschichtungssofen.

Nach /25/ scheint die zweite Auffassung bestimmend für die CP-Kontamination zu sein.

Auch die Ursachen für die Verunreinigung der Brennelemente sind noch nicht grundlegend geklärt, doch besteht eine deutliche Verbindung zwischen der CP- und der BE-Kontamination.

Die BE-Matrixkontamination erfolgt durch die Schwermetalldiffusion aus dem CP im Laufe der Hochtemperaturglühung (1800 - 1950 °C), während die brennstofffreie Schale vor allem durch den vorhandenen Uranuntergrund verschmutzt ist. Weiterhin scheinen Kondensationseffekte der Urandämpfe im Anschluß an die Hochtemperaturglühung für eine erhöhte Oberflächenkontamination des BE verantwortlich zu sein.

Die an Bestrahlungsexperimenten durchgeführten Nachrechnungen zeigen, daß die Freisetzung bei intakten coated particles vor allem aus der Kontamination stammt /3/ und erst erhöhte Temperaturen (BISO-Partikel etwa 1250 °C) den Quellterm aus der Schwermetallkontamination zugunsten der Partikelfreisetzung verdrängen. Die Kenntnis genauer BE-Kontaminationen ist deshalb für die Freisetzungsrechnung von großer Wichtigkeit.

3.1.4.1 CP-Kontamination der AVR-Brennelementtypen

Für den größten Teil der im AVR-Core eingesetzten BE-Typen liegen keine speziellen Untersuchungen zur Coated-particle-Kontamination vor. Lediglich für einige ausgewählte Partikeln der GK- und GO(THTR)-Brennelemente wurden im Rahmen von Kugel-Bestrahlungsexperimenten Untersuchungen durchgeführt. Nach /12/ gelten für die hochdichte Außenschicht der AVR-Brennelemente folgende Richtwerte:

$$(U,Th)C_2\text{-Partikel} \quad 2 \cdot 10^{-3} \quad U_{HDI-PyC}/U_{ges}$$

$$(U,Th)O_2\text{-Partikel} \quad 4 \cdot 10^{-4} \quad U_{HDI-PyC}/U_{ges}$$

In /25/ wird ein Zusammenhang zwischen Partikel- und Brennelementkontamination aufgezeigt. Danach liegt die Kontamination der HDI-Schicht um den Faktor 5 - 10 höher als die BE-Kontamination. Die Kontamination

der Pufferschicht wird hierbei gleich der der HDI-Schicht jedoch mindestens gleich $1 \cdot 10^{-3}$ angesetzt. Dem overcoating als Übergangsschicht zur Matrix wurde eine volumengewichtete BE-Kontamination zugeordnet.

Die so ermittelten HDI-Schicht-Kontaminationen überschreiten die oben angegebenen Richtwerte. Sie fügen sich jedoch zwanglos, wie Tabelle 6 zeigt, in die wenigen bekannten Messungen ein.

BE-Typ	CP-Kont (SPAR) $U_{\text{HDI-PyC}}/U_{\text{CP}}$	CP-Kont (Messung) $U_{\text{HDI}}/U_{\text{CP}}$
U,T	$3 \cdot 10^{-3}$	
GK	$6 \cdot 10^{-3}$	
GO	$8 \cdot 10^{-4}$	Bestr.-Exp.: V BP-S16 $(5,0 - 8,0) \cdot 10^{-4}$
GLE	$5 \cdot 10^{-3}$	
GFB	$1 \cdot 10^{-3}$	
GO(THTR)	$2 \cdot 10^{-3}$	Bestr.-Exp.: GO 105 f, R2-K3; R2-K9 $(1,0 - 4,7) \cdot 10^{-3}$; $(1,5 - 1,7) \cdot 10^{-3}$

Tab. 6: BE-Typ-spezifische Coated-particle-Kontamination

3.1.4.2 Kontamination der AVR-Brennelementtypen

Mit dem Einsatz des AVR als Testreaktor zur Brennelementerprobung erhält die BE-Kontamination für die Freisetzungsnachrechnung ein besonderes Gewicht. Tabelle 7 zeigt die zeitliche Zugabe der unterschiedlichen BE-Chargen und ihre zugeordnete BE-Kontamination /12/. Es wird deutlich, daß die Brennelementkontamination nicht nur von Typ zu Typ, sondern auch innerhalb verschiedener Chargen desselben Typs (z. B. GO(THTR)-1-Charge 9, GO(THTR)-2-Charge 10,11) schwankt.

Element- typ	Nachfüll- charge	Stück- zahl	Datum/WB der ersten Zugabe	Urankontamination $\frac{U_f/U_{ges}}{10^{-4}}$
U	Erstcore	30155	Juli 1966/ 0	4,7*
T	1	4550	11.10.1968/ 3	0,7 ± 0,5
GK	3	17770	21.04.1969/ 9	9,6*
GK	4	6210	27.07.1970/ 34	
GK	5	18830	04.11.1970/ 43	
GO	5	13490	29.12.1971/ 69	1,0
GK	5	550	01.11.1972/ 88	9,6*
GO	7	2930	11.11.1972/ 89	1,0*
GK	5	850	26.12.1972/ 93	9,6
GO	7	3490	13.01.1973/ 94	1,0*
GK	5	6590	06.04.1973/ 99	9,6
T	1	2954	20.08.1973/108	0,7 ± 0,5
GO	KATHER	1956	19.10.1973/112	1,0*
GLE-1	6 (BISO)	2400	01.12.1973/115	7,0 ± 7,0
GO	KATHER	5920	17.01.1974/120	1,0*
GFB-1	8 (BISO)	1440	13.05.1974/128	2,6
GFB-2	8 (TRISO)	1610	13.05.1974/128	1,6
GO(THTR)-1	9	5145	25.09.1974/132	4,8 ± 0,6
GO(THTR)-2	10,11	15020	08.12.1974/138	2,7 ± 0,6
GO	KATHER	11920	26.07.1975/155	1,0*
GO	12	11325	17.03.1976/171	2,9 ± 0,0

* aus Vergleichsmessungen berechnet

Tab. 7: Zugabe und Kontamination der AVR-Nachfüllchargen

Der Individualitätsverlust der Chargen im Rechenmodell zwingt zur Bildung von Mittelwerten, die durch die zeitlichen Mengenanteile der verschiedenen Chargen eines Typs bestimmt werden. Abbildung 8 zeigt den zeitlichen Verlauf der BE-Kontamination des Typs GO(THTR) im Rechenmodell. Die Zugabe der Chargen 10, 11 mit ihrer geringeren Schwermetallverschmutzung bewirken ein langsames Absinken des Gesamtkontaminationspegels bis zum Ende des Zugabezeitraumes. Dabei blieb die abbrandbedingte Verminderung des Kontaminationspegels unberücksichtigt, weil eine chargenspezifische Abbrandermittlung innerhalb eines BE-Typs im Rechenmodell nicht erfolgt. Der Fehler ist jedoch aufgrund des geringen mittleren Abbrandes während des Zugabezeitraumes - WB 138: 0,101% Fima, WB 155: 1,02% Fima - zu vernachlässigen.

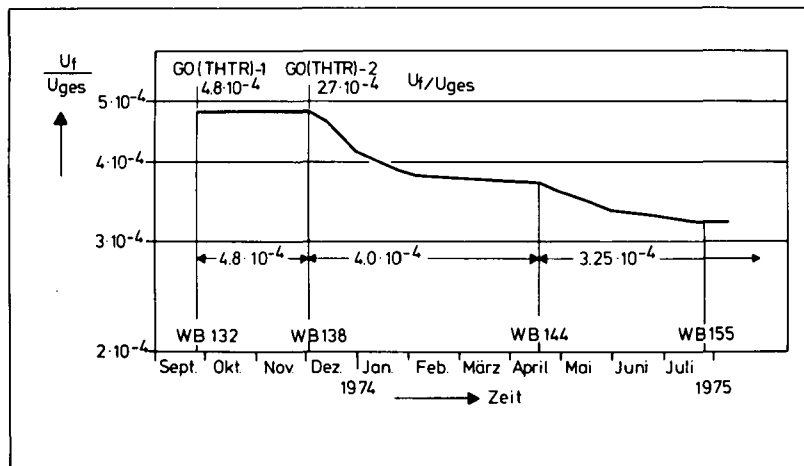


Abb. 8: Verlauf der mittleren GO(THTR)-BE-Kontamination im Zugabezeitraum

Die der Freisetzungsnachrechnung zugrunde liegenden BE-Typ-Kontaminationen zeigt Tabelle 8.

BE-Kontamination	$\frac{U_f/U_{ges}}{10^{-4}}$
U	4,7
T	0,7
GK	9,6
GO Charge 5,7, KATHER	1,0
GLE	7,0
GFB-1 BISO	2,6
GFB-2 TRISO	1,6
GO(THTR) < WB 138	4,8
GO(THTR) WB 138 - 144	4,0
GO(THTR) > WB 144	3,25

Tab. 8: BE-Typ-spezifische Kontamination im Programm SPAR

3.1.5 Die Transportdaten für Cs-137 und Sr-90

Drei Mechanismen bestimmen die Höhe der Spaltproduktfreisetzung aus Partikel und Brennelement. In der Reihenfolge ihres zeitlichen Auftretens sind dies

- Transport durch direkten Rückstoß (Recoil),
- Transport durch Diffusion,
- Evaporation.

Ihre Materialabhängigkeit in Verbindung mit den nach Abbrand und Zusammensetzung unterschiedlichen Freisetzungstypen des AVR-Cores macht eine differenzierte Unterscheidung der Transportdaten nötig, der jedoch die Begrenztheit und zugleich Verschiedenheit der verfügbaren Daten entgegenstehen. Die bisherigen Untersuchungen waren unter dem Gesichtspunkt der Wartbarkeit von Komponenten im Normalbetrieb auf die Schlüsselspaltprodukte Cs und Sr begrenzt. Die Verschiedenheit der verfügbaren Daten ist dagegen durch ihre vielfachen Abhängigkeiten bedingt, die sich in großen Streubreiten bemerkbar machen. Als Gründe sind zu nennen:

- Abbrandzustand und Temperaturbereich, in denen die Daten ermittelt wurden,
- Größe der hergestellten Partikelcharge und Unrundheit der Hüllschichten,
- Verschiedenheit der PyC-Dichten,
- Unterschiedliche Meß- und Auswertemethoden.

Die angegebenen Werte sind deshalb effektive Mittelwerte und stellen den derzeitigen Kenntnisstand dar.

3.1.5.1 Die Recoilreichweite

Recoil bezeichnet den verzögerungsfreien Transport eines Spaltproduktatoms aufgrund seiner aus der Spaltung erworbenen kinetischen Energie über eine gewisse Strecke, die Recoilreichweite. Über diesen temperaturunabhängigen Mechanismus werden nach /2/ einige Prozent des Spaltproduktinventars aus dem Partikelkern in die HDI-Schichten transportiert. Er ist immer dann von Bedeutung, wenn die Diffusion wegen niedriger Temperaturen klein ist, was für etwa 20% aller AVR-Coreregionen zutrifft.

Die nuklid- und materialabhängigen Recoilreichweiten \bar{R} zeigt Tabelle 9.

Material	\bar{R}_{Cs} [μm]	\bar{R}_{Sr} [μm]
Kern: (U,Th) C_2 , (U,Th) O_2 , UO_2 , UC_2	7,5	10
Pufferschicht	15	25
SiC-Schicht	8,5	11
HDI-Schicht	15	14
overcoating	15	14

Tab. 9: Recoilreichweiten von Caesium und Strontium /19/

3.1.5.2 Die Diffusionsdaten

Die Diffusion wird üblicherweise durch einen temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten mit Hilfe einer Arrheniusbeziehung beschrieben:

$$D(T) = D_0 \cdot \exp(-Q/(R \cdot T)),$$

mit	D(T)	Diffusionskoeffizient	$\left[\text{cm}^2/\text{s} \right],$
	T	Temperatur	$\left[\text{K} \right],$
	D ₀	Frequenzfaktor	$\left[\text{cm}^2/\text{s} \right],$
	Q	Aktivierungsenergie	$\left[\text{cal/mol} \right],$
	R	allg. Gaskonstante 1,987	$\left[\text{cal/mol K} \right].$

Frequenzfaktor und Aktivierungsenergie werden ebenfalls durch das Nuklid und die Materialien bestimmt. Sie müssen für den BE-Matrixgraphit sowie für folgende fünf nach Brennstoff und Struktur der HDI-Schicht unterschiedene CP-Gruppen (Partikelkonzepte) angegeben werden.

- HTI-BISO-Mischpartikel (High Temperature Isotropic) mit (U,Th)C₂-Brennstoff, deren HDI-Schicht aus Methan bei etwa 2100 °C abgeschieden wird (U-, T-, GK-BE)
- HTI-BISO-Mischpartikel mit (U,Th)O₂-Brennstoff (GO-, GO(THTR)-BE)
- LTI-BISO-Abbrand-/Brutpartikel (Low Temperature Isotropic) mit UO₂-Brennstoff. Die HDI-Schicht wird aus Propylen (Propen) bei etwa 1300 °C abgeschieden (GLE-BE, GFB-BE)
- LTI-TRISO-Abbrandpartikel mit UO₂-Brennstoff (GFB-BE)
- LTI-BISO-Brutpartikel mit ThO₂-Brutstoff (GFB-BE)

In Tabelle 10 und 11 sind die verwendeten CP-Transportdaten für Cs-137 und Sr-90 zusammengestellt.

Material	$D_{\text{Cs-137}}$ [cm ² /s]	$Q_{\text{Cs-137}}$ [cal/mol]	Bemerkung	Ref.
Kern: UO ₂ , (U,Th)O ₂ UC ₂ , (U,Th)C ₂ ThO ₂	$2,39 \cdot 10^{-8}$	30930	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 1,1 \cdot 10^{-13}$ Effektiver Mittelwert bis 1976 bekannter Daten	/27/
Pufferschicht	$1 \cdot 10^{-8}$			/3/
SiC-Schicht	$1 \cdot 10^{-15}$		$800^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1300^{\circ}\text{C}$	/19/
HDI-Schicht				
HTI	$7,08 \cdot 10^{-4}$	65520	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 3,99 \cdot 10^{-14}$	/27/
LTI	$1,65 \cdot 10^{-1}$	75200	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 2,02 \cdot 10^{-14}$	/3/
overcoating			siehe Tabelle 12	

Tab. 10: Transportdaten für Cs-137 im coated particle

Während sich die Cs-137-Daten bei Nachrechnungen von Bestrahlungsexperimenten bewährt haben /3,19/, sind die Sr-90-Werte ein erster Anhalt und müssen in weiteren Auswertungen verifiziert werden. Dies gilt vor allem im Temperaturbereich oberhalb von 1100 °C, in dem sich durch Dissoziation der Sr-Oxide eine Änderung der Transportmechanismen ergeben kann /26/.

Die Werte der Tabelle 12 beschreiben die Diffusion im BE-Matrixgraphit. Dabei wird auf eine Unterscheidung zwischen dem Elektrographit der Erstcore-Brennelemente und dem A3-Graphit der gepreßten Brennelemente aus den in Kapitel 3.1.3.2 genannten Gründen verzichtet.

Material	$D_{\text{Sr-90}}$ [cm ² /s]	$Q_{\text{Sr-90}}$ [cal/mol]	Bemerkung	Ref.
Kern: UO ₂ , (U,Th)O ₂ , ThO ₂	$1,35 \cdot 10^{-7}$	166000	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 4,3 \cdot 10^{-22}$ Abbrand: <15% $T \leq 1000^{\circ}\text{C}$	/26/
UC ₂ , (U,Th)C ₂	$1,45 \cdot 10^{-7}$	49000	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 5,6 \cdot 10^{-16}$ Abbrand: 4 - 13% $T \geq 1000^{\circ}\text{C}$	/19/
Pufferschicht	$1 \cdot 10^{-10}$		$T > 1000^{\circ}\text{C}$	/19/
SiC-Schicht	$1 \cdot 10^{-13}$		$800^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1300^{\circ}\text{C}$	/19/
HDI-Schicht				
HTI	$2 \cdot 10^{-4}$	47300	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 1,5 \cdot 10^{-12}$ $T < 1100^{\circ}\text{C}$	/26/
LTI	$2,3 \cdot 10^{-2}$	47000	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 1,96 \cdot 10^{-10}$	
overcoating			siehe Tabelle 12	

Tab. 11: Transportdaten für Sr-90 im coated particle

Matrix- Graphit		D_{O} [cm ² /s]	Q [cal/mol]	Bemerkung	Ref.
Cs-137	(a)	$4,43 \cdot 10^{-3}$	26000	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 1,5 \cdot 10^{-7}$ $800^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1300^{\circ}\text{C}$	/19/
	(b)	$2 \cdot 10^{-1}$	38000	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 5,98 \cdot 10^{-8}$ $800^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1400^{\circ}\text{C}$	/3/
Sr-90		$1,66 \cdot 10^2$	64000	$D^{1000^{\circ}\text{C}} = 1,7 \cdot 10^{-9}$ $500^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1050^{\circ}\text{C}$	/18/

Tab. 12: Transportdaten im Graphit

Die Cs-137-Diffusion aus dem Matrixgraphit wurde jedoch mit zwei unterschiedlichen Datensätzen berechnet, deren Arrheniusverlauf in Abbildung 9 dargestellt ist.

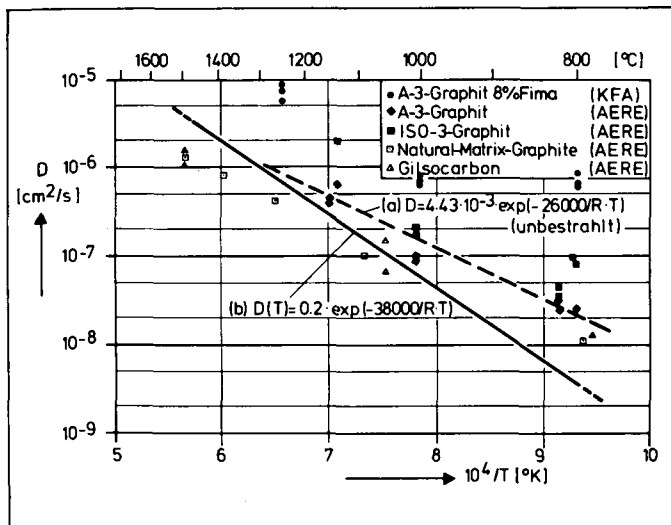


Abb. 9: Effektiver Diffusionskoeffizient für Cs-137 in Graphit

Der an unbestrahltem A3-Graphit ermittelte Datensatz (a) ermöglicht nach /19/ eine gute Beschreibung der Caesium-Freisetzung. Darüberhinaus wird er bei den Freisetzungsvorausberechnungen der verschiedenen Reaktorkonzepte verwendet.

Das Datenpaar (b) wurde bei den Nachrechnungen von /3/ benutzt, da die gemessene Freisetzung der betreffenden Bestrahlungsexperimente mit dem Datensatz (a) nicht verifiziert werden konnte. Die Anwendung dieses für die Diffusion auf den Korngrenzen ("schnelle Phase") geltenden Diffusionskoeffizienten führte in Verbindung mit der parallel laufenden Volumendiffusion ("langsame Phase") zu einer guten Übereinstimmung der BE-Profile und der Freisetzung.

Ebenso wie bei den CP-Daten wurden die Sr-90-Transportdaten im Graphit, deren Arrheniusgrade Abbildung 10 zeigt, nur an wenigen Experimenten überprüft.

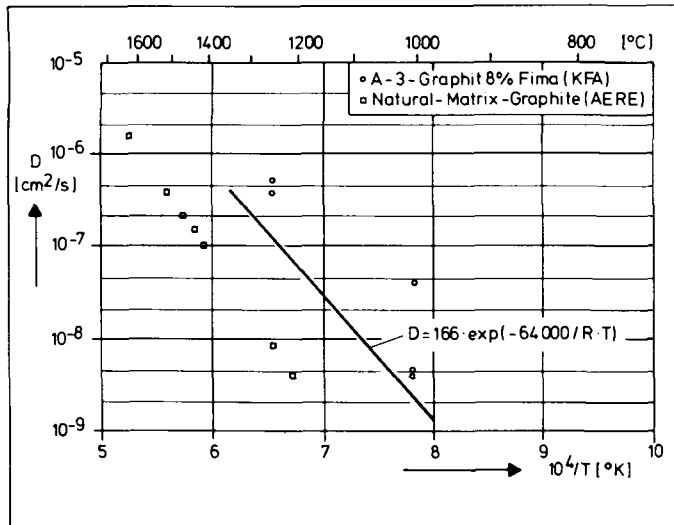


Abb. 10: Effektiver Diffusionskoeffizient für Sr-90 in Graphit

Nach /26/ konnten zwar die gemessenen BE-Konzentrationsprofile, aber nicht die gemessenen Freisetzungen durch Rechnungen mit dem angegebenen Datensatz angepaßt werden. Die Nachrechnung von Strontium-Profilen und Freisetzungen hat jedoch erst begonnen, so daß Änderungen in den Daten zu erwarten sind.

3.1.5.3 Der Evaporationsprozeß

Hat ein Spaltproduktatom, ohne zu zerfallen, die Brennelementoberfläche erreicht, kann es mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit in die oberflächennahe Grenzschicht (laminare Unterschicht) des Kühlmediums abdampfen. Dieser Abdampfvorgang (Evaporationsprozeß), der mit dem Aufbau eines Partialdruckes in der Grenzschicht verbunden ist, wird durch die Adsorptionsisotherme beschrieben.

Die funktionelle Abhängigkeit des Gleichgewichtspartialdruckes p_w [atm] von der Oberflächentemperatur [K] und der Spaltproduktkonzentration an der Graphitoberfläche C_{Gr} [$\mu\text{g/g}_{Gr}$] wird für kleine Konzentrationen, $C_{Gr} \leq 40 \mu\text{g/g}_{Gr}$, wie sie am AVR vorliegen, durch den linearen Ansatz von Langmuir dargestellt.

$$p_w = C_{Gr} \cdot \exp(a + b/T)$$

Die Koeffizienten a , b werden aus gemessenen Adsorptionsisothermen gefittet.

Wie bei den Diffusionskonstanten ergibt sich auch bei den Adsorptionsisothermen aufgrund der vereinzelt Messungen kein einheitliches Bild. So liegen z. B. bis heute keine Messungen der Sr-Adsorptionsisothermen an A3-Graphit vor. Nach /26/ beschreibt deshalb die angegebene Adsorptionsisotherme das Abdampfen des Strontiums von der BE-Oberfläche nur unvollkommen.

Für die Rechnung wurden die Werte der Tabelle 13 verwendet.

Spaltprodukt	a	b	Ref.
Cs	- 3,4	- 25,5	/19/
Sr	10,7	- 47,0	/26/

Tab. 13: Koeffizienten der Adsorptionsisothermen

Neben den Adsorptionsisothermen bestimmt die Stoffübergangszahl β [cm/s] die Schnelligkeit des SP-Transports in das Kühlgas:

$$\beta = \frac{Sh \cdot D_G}{d_h} ,$$

mit Sh Sherwood-Zahl,
 D_G Gasphasendiffusionskoeffizient des SP in He [cm²/s],
 d_h hydraulischer Durchmesser [cm].

Der Gasphasendiffusionskoeffizient D_G ist druck- und temperaturabhängig und wird, ausgehend von einem für den physikalischen Normzustand ($T = 273,16$ K, $p = 1$ atm) definierten Diffusionskoeffizienten D_{G0} , auf den vorhandenen Betriebszustand umgerechnet.

Für die durchgeführten Rechnungen wurden folgende Werte verwendet:

Caesium: $D_{G0} = 0,407$ Strontium: $D_{G0} = 0,52$ [cm²/s].

Eine ausführliche Darstellung zur Adsorptionsisotherme und Stoffübergangszahl findet sich in /19/.

3.2 Die nuklearen Modellparameter

Die den Abbrand-Umwälzzustand beschreibenden neutronenphysikalischen Größen wirken sich in zweifacher Hinsicht auf die Freisetzungsberechnung aus:

- Über Neutronenfluß und Wirkungsquerschnitt ergibt sich das für die Diffusion verfügbare Spaltproduktinventar,
- Die sich aus der Spaltrate ergebende BE-Leistung beeinflusst über die BE-Temperaturverteilung die Stärke der Diffusion.

Von einer prinzipiell richtigen, jeden WB-Zeitschritt berücksichtigenden Bestimmung dieser Daten wurde jedoch abgesehen, da einerseits die kurzfristigen Kühlgastemperaturschwankungen nur geringe neutronenphysikalische Auswirkungen haben, andererseits der Rechenzeitaufwand in keinem Verhältnis zur Genauigkeit der errechneten Freisetzung steht.

Die zur Ermittlung der neutronenphysikalischen Größen erforderlichen Spektralrechnungen wurden vor VAMPYR-Betriebsbeginn im Abstand von etwa 10 WB ($\hat{=}$ ca. 120 d) und während der VAMPYR-Experimente für jeden Versuch durchgeführt, um die Rückkopplung der neu eingestellten Gasaustrittstemperatur auf die Moderatortemperatur, Spektralverteilung und neue Temperaturverteilung genau zu erfassen.

3.2.1 Die Aufbereitung der neutronenphysikalischen Daten

Zur Durchführung der Spektralrechnung bot sich eine am AVR von /28/ erstellte Kombination der Rechenprogramme EREBUS-MUPO-NECKAR-MOD mit dem Programm FIMEX an. In dieser Verbindung haben die einzelnen Teile folgende Aufgabe:

Das zweidimensionale Spektral-Diffusions-Abbrandprogramm EREBUS-MUPO errechnet in Verbindung mit dem Temperaturprogramm NECKAR-MOD und unter

Berücksichtigung eines Nuklidvektors regionsabhängige Flüsse, Wirkungsquerschnitte und Leistungsverteilungen. Diese dienen dem Programm FIMEX als Ausgangsgrößen zur Ermittlung des durch den Abbrand veränderten Nuklidvektors, der seinerseits wieder für eine weitere Spektral- und Diffusionsrechnung zur Verfügung steht.

Wegen der weitgehenden Übereinstimmung des SPAR-Abbrand-Umwälzteils mit dem FIMEX-Modul konnten die Daten der Spektral-Diffusionsrechnung ohne größere Änderungen für die Freisetzungsrechnung mit SPAR übernommen werden.

In Abbildung 11 ist der Datenverlauf in einem Flußdiagramm mit folgender Bedeutung der Symbole wiedergegeben:

- ϕ^1 Regionsneutronenfluß
- σ^1 Regionswirkungsquerschnitte aller 12 Schwermetalle
- N^1 Regionsnuklidvektor
- q Leistungsverteilung (Meshpowers)
- T Temperaturverteilung in der Spektralrechnung
- $T_{\text{Oberfl.}}^1$ Regionale BE-Oberflächentemperatur
- T_{Gas}^1 Regionale Kühlgastemperatur

3.3 Die Betriebsdaten

Aus der Menge der anfallenden Betriebsdaten sind die mittleren Kühlgastemperaturen und die thermische Reaktorleistung für die Freisetzung von besonderer Bedeutung.

Zum einen stellen sie die Randbedingungen bei der Ermittlung der Temperaturverteilung im Core, zum anderen dienen sie zur Berechnung des Gas-massendurchsatzes.

Die thermische Reaktorleistung wird mit einer Ungenauigkeit von etwa 1% über eine Wärmebilanz am Dampferzeuger unter Berücksichtigung des Verlustanteils aus Strahlung und Wärmetransport durch den Seitenreflek-

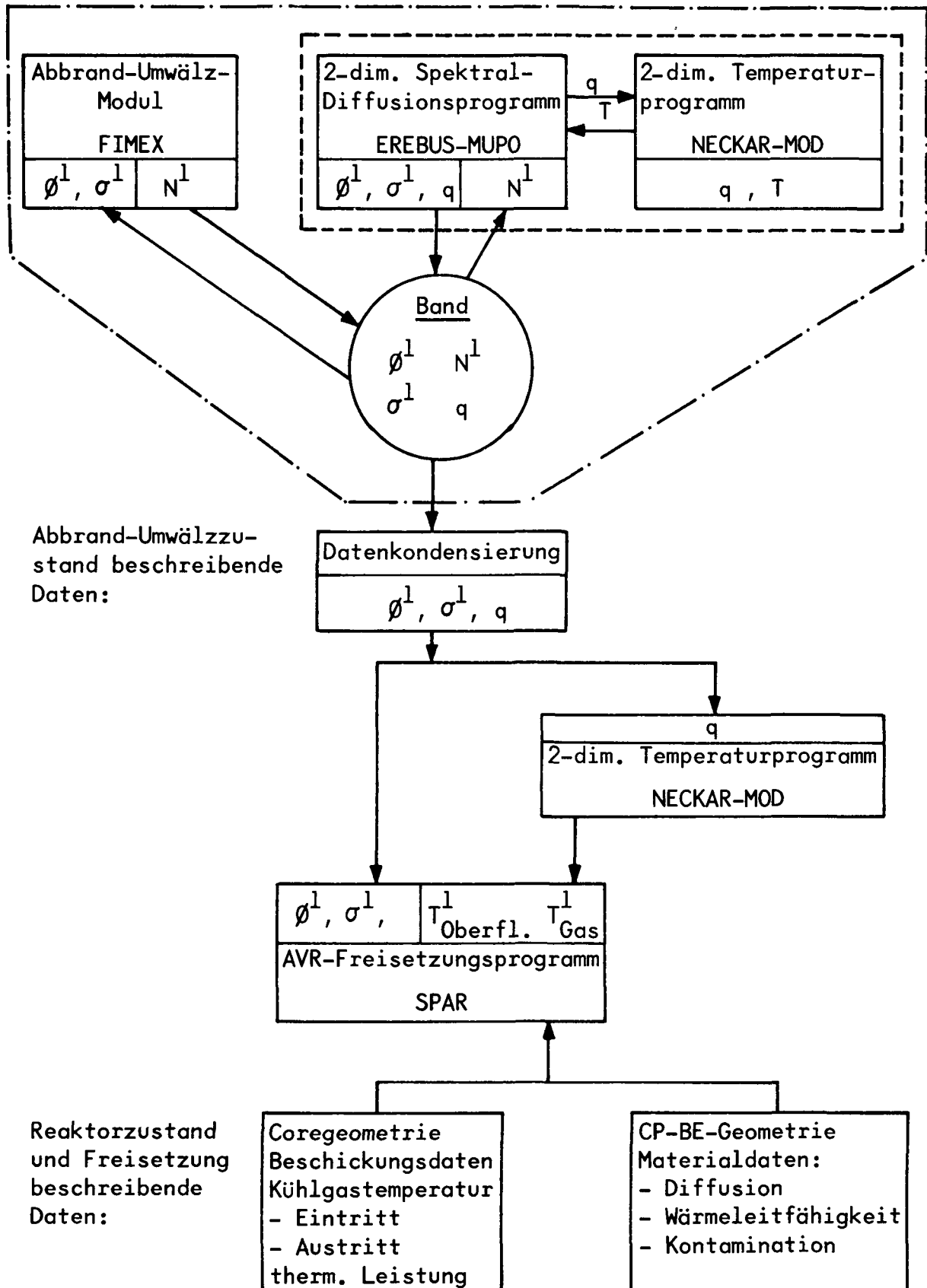


Abb. 11: Flußdiagramm der Datenaufbereitung für die AVR-Freisetzungsrechnung

tor bestimmt. Die mittlere Gaseintrittstemperatur wird von einer Thermoelementgruppe im Kaltgasbereich des Gebläsedruckstutzens, die mittlere Gasaustrittstemperatur oberhalb der 2. Kohlesteinlage ca. 2,70 m über der Oberfläche der Kugelschüttung gemessen. Der Heißgasmeßfehler ist kleiner ± 25 K.

3.3.1 Berechnung und Bedeutung des Massendurchsatzes

Mit Hilfe des Massendurchsatzes wird die je Zeitschritt freigesetzte Aktivität auf die durchgesetzte Gasmenge normiert. Für die Nachrechnung ist darum die Erfassung der tatsächlich durchgesetzten Gasmenge von besonderer Bedeutung.

Der Massenstrom \dot{m} [kg/s] errechnet sich aus

$$\dot{m} \text{ (WB)} = \frac{L_{th} \text{ (WB)}}{c_{p_{He}} \cdot [T_{GA} \text{ (WB)} - T_{GE} \text{ (WB)}]}, \quad (8)$$

mit	$c_{p_{He}}$	spezifische Wärme des He: 5193	$[J/(kg \text{ K})]$	
	$L_{th} \text{ (WB)}$	mittlere thermische Reaktorleistung	$[W]$	
	$T_{GA} \text{ (WB)}$	mittlere Gasaustrittstemperatur	$[^{\circ}C]$	} je WB.
	$T_{GE} \text{ (WB)}$	mittlere Gaseintrittstemperatur	$[^{\circ}C]$	

Anschließend wird der Massenstrom auf die im physikalischen Normzustand (273,16 K, 1 atm) vorliegende, je WB-Zeitschritt durchgesetzte Gasmenge $m_N \text{ (WB)} [Nm^3]$ umgerechnet.

$$m_N \text{ (WB)} = \dot{m} \text{ (WB)} \cdot \Delta t_{WB} \cdot \frac{T_o \cdot R_{He}}{\beta} \quad (9)$$

Dabei ist	Δt_{WB}	die Dauer des WB-Zeitschrittes	$[s]$,
	T_o	die Normtemperatur	$[K]$,

$$R_{\text{He}} \quad \text{die He-Gaskonstante: } 0,02077 \quad \left[\text{bar m}^3 / (\text{kg K}) \right],$$

$$\hat{p} \quad \text{Druckumrechnungsfaktor } 1,0133 \quad \left[\text{bar/atm} \right].$$

Voraussetzung zur Errechnung der WB-gemittelten Temperaturen und Leistungen ist die Aufarbeitung der entsprechenden Tagesdaten. Die Erfassung, Schematisierung und Einordnung der Datenmenge von 10 Betriebsjahren in die Zeitskala des Rechenprogramms (WB-Zeitschritte) wurde zu einem echten Problem des Datenmanagements /29/. Mit der Erstellung einer AVR-Datenbank durch /30/ und ihrem Einsatz für die Freisetzungsrechnung wurde eine wesentliche Verbesserung der Eingangsdaten erzielt.

Auf dieser Grundlage konnten die Tagesdaten in die für das Rechenmodell geeignete Form des WB-Zeitschrittes umgewandelt werden. Dazu wurden, der WB-Definition nach Kapitel 2.2.1 folgend, aus den in den jeweiligen Umwälzzeitraum fallenden einzelnen Tagesdaten gewichtete WB-Mittelwerte gebildet.

$$X(\text{WB}) = \frac{\sum_{i = uK}^{uK + 7200} X(t_i) \cdot [A_{th}(t_i) - A_{th}(t_{\hat{i}})]}{\sum_{i = uK}^{uK + 7200} [A_{th}(t_i) - A_{th}(t_{\hat{i}})]}$$

$X(\text{WB})$ gewichteter WB-Mittelwert entsprechend $X(t_i)$

$X(t_i)$ Betriebsgrößen wie T_{GA} , T_{GE} , L_{th} als Funktion der bis zum Tage t umgewälzten Kugelzahl i

$\left. \begin{array}{l} A_{th}(t_i) \\ A_{th}(t_{\hat{i}}) \end{array} \right\}$ Zum Zwecke der Wichtung besonders gut geeignete integrierte thermische Arbeit als Funktion der in zwei aufeinanderfolgenden Tagen t umgewälzten Kugelzahl \hat{i} und i .

Abbildung 12 zeigt den Verlauf der WB-gemittelten Gasaus- und Gaseintrittstemperatur sowie der thermischen Reaktorleistung.

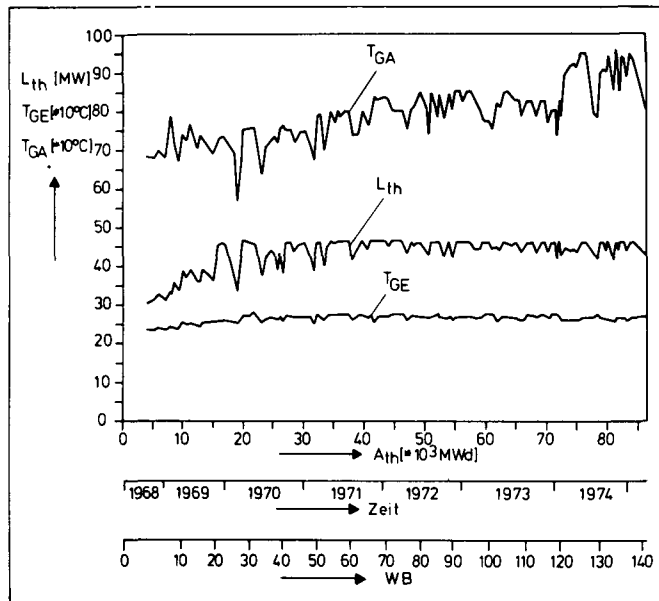


Abb. 12: WB-gemittelter Temperatur- und Leistungsverlauf

Mit den so gebildeten Mittelwerten kann aus Gl. (8) der entsprechende Massendurchsatz und anschließend die freigesetzte spezifische Aktivität je WB $K_C(WB) \left[\text{Ci}/\text{Nm}^3 \right]$ berechnet werden.

$$K_C(WB) = \frac{\bar{R}(WB)}{m_N(WB)} \quad (10)$$

$\bar{R}(WB)$ freigesetzte Aktivität des Gesamtcores je WB $\left[\text{Ci} \right]$.

3.3.2 Berechnung und Wahl der Temperaturverteilung

Die Temperaturverteilung des Cores ist wegen des temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten ein entscheidender Modellparameter in der Freisetzungsrechnung. Die Güte und der Eingriffszeitpunkt der neuen Temperaturverteilung in das Rechenmodell sind darum mitentscheidend für die Genauigkeit und Vergleichbarkeit von Rechnung und Messung. Die Güte wird bestimmt durch das Temperaturprogramm und die eingehenden Randbedingungen, wie Kühlgasein- und -austrittstemperatur bzw. thermische Reaktorleistung. Die Wahl des richtigen Einsatzzeitpunktes ist abhängig von der genauen Zuordnung zwischen WB-Zeitschritt des Rechenmodells und tatsächlicher Betriebsdauer.

3.3.2.1 Das Temperaturprogramm NECKAR-MOD

In Kapitel 3.2.1 wurde der Datenfluß der für die Freisetzungsrechnung benötigten Rechenprogramme beschrieben. In diesem Zusammenhang berechnet das Programm NECKAR-MOD neben der das thermische Spektrum bestimmenden Moderatortemperatur vor allem die für die Freisetzungsrechnung wichtige mittlere Brennelementoberflächen- und Kühlgastemperaturverteilung der 100 Coreregionen.

Die Temperaturberechnung zerfällt in zwei Teile:

- Ermittlung des Kühlgastemperaturfeldes aus einem vorgegebenen Leistungsdichtefeld,
- Berechnung der Temperaturverteilung der Brennelemente.

Dabei gelten folgende idealisierende Annahmen:

- Das AVR-Core wird durch einen Zylinder mit dem Coreradius und der vom Kugelabzugsrohr an aufwärts beginnenden Corehöhe approximiert. In dem durch den konischen Bodenreflektor ausgesparten Zylinderbereich des Modells wird das Leistungsdichtefeld zu Null gesetzt.
- Die Druckverhältnisse sind in jedem radialen Corequerschnitt konstant.
- Die Auswirkungen des Abzugskegels am unteren Coreende und des Schüttkegels an der Coreoberfläche auf Strömungs- und Temperaturverhalten werden durch Vorgabe einer radial variablen Porosität des Kugelhaufens simuliert.
- Die vorhandene Radialströmung des Kühlgases und die Wärmeableitung in den Seitenreflektor werden vernachlässigt.
- Es wird eine konstante Massenstromdichte beim Eintritt in das Core vorausgesetzt.
- Die in das Core hineinragenden Nasen mit ihrer Störung des Strömungswiderstands werden nicht berücksichtigt.

- Das dreidimensionale Kugelfließen wird in einem zweidimensionalen Fließmodell näherungsweise simuliert. Die sich ergebende Nuklidvektorverteilung und das darauf aufbauende Leistungsdichtefeld sind die Grundlage der zweidimensionalen Temperaturverteilung.

Von den genannten Annahmen haben vor allem die vier letzten Punkte Auswirkungen auf die errechnete Temperaturverteilung, wie kürzlich durchgeführte Messungen des radialen Temperaturprofiles andeuten /31/.

Im Übrigen hat sich das am AVR standardmäßig eingesetzte Programm bei den Rechnungen zur Einstellung eines möglichst günstigen Gasaustrittstemperturprofiles und bei der Kontrolle zur Einhaltung der maximalen BE-Temperaturen bewährt.

3.3.2.2 Der Einsatz der Temperaturverteilung

Den Einsatz der Temperaturverteilung bestimmen von der betrieblichen Seite her

- der sich mittelfristig ändernde Abbrand-Umwälzzustand des Cores unter Berücksichtigung neu eingesetzter Brennelementtypen,
- die thermodynamischen Daten in Hinblick auf langfristige Änderungen der Leistung und Kühlgastemperatur.

Was die Freisetzungsnachrechnung betrifft, interessieren vor allem die Temperaturverteilungen jedes einzelnen VAMPYR-Versuches. Voraussetzung dazu war eine für jeden Versuch erstellte Spektralrechnung.

In Abbildung 13 sind die Temperaturverteilungen in ihrer zeitlichen Aufeinanderfolge dargestellt.

Die angegebenen Gasaus- und -eintrittstemperaturen sowie die thermische Reaktorleistung sind für die jeweilige Verteilung kennzeichnend und repräsentieren in der Regel den höchsten im WB-Intervall der Verteilung auftretenden Wert (siehe dazu Abb. 12). Für die Betriebszeit vor Beginn der VAMPYR-Versuche stellt diese Auswahl sicherlich eine konservative Annahme dar. In den Versuchsperioden der

ungünstig ist, hat der jeweilige Abbrand-Umwälzzustand des Cores einen nicht unerheblichen Einfluß auf die Freisetzung.

Da die mittlere Gasaustrittstemperatur zwar die Aufheizung des Kühlgases, aber nur in unzureichendem Maße den diffusionsbestimmenden Temperaturzustand des Cores beschreibt, wird eine diffusive Coretemperatur definiert, die den Einfluß einer Änderung des Abbrand-Umwälzzustandes in Hinblick auf die Temperaturverteilung und die damit verbundene Diffusion deutlich macht.

Zu diesem Zwecke wird mit Hilfe der Arrheniusbeziehung ein BE-typ- und abbrandklassenabhängiger Diffusionskoeffizient D_{jkl} für jede Core-region l bestimmt. Die Arrheniusgleichung wird dann als Volumenintegral für jede Abbrandklasse j und jeden BE-Typ k geschrieben:

$$D_{jkl} = \frac{D_o}{V_{BE}^k} \int_0^{V_{BE}} e^{-\frac{Q}{R \cdot T_{jkl}(r)}} dV ,$$

mit D_{jkl} typ- und abbrandklassenspezifischer Diffusionskoeffizient der Region l ,

V_{BE}^k Volumen des BE-Typs k ,

$T_{jkl}(r)$ typ- und abbrandklassenabhängige, radiale BE-Temperaturverteilung.

Mit Hilfe des im Programm SPAR verwendeten Feinpunktmaschennetzes kann das Volumenintegral numerisch gelöst werden.

$$D_{jkl} = \frac{D_o}{r_{BE}^k} \sum_{n=1}^N e^{-\frac{Q}{R \cdot T_{jkl}(n)}} (r_n - r_{n-1})_k \cdot (r_n^2 + r_n \cdot r_{n-1} + r_{n-1}^2)_k$$

r_n BE-Typ-Feinmaschenradius am Ort n
 r_{BE}^k Außenradius des BE-Typs k

Über die bekannte BE-Abbrandverteilung n_{jkl} errechnet sich der mittlere regionale Diffusionskoeffizient \bar{D}_1 :

$$\bar{D}_1 = \frac{\sum_k \sum_j D_{jkl} \cdot n_{jkl}}{\sum_k \sum_j n_{jkl}}$$

Aus den einzelnen regionalen Diffusionskoeffizienten können über eine Regionsvolumenwichtung sowohl kanalweise als auch für das gesamte Core mittlere Diffusionskoeffizienten ermittelt werden.

$$D_{Core} = \frac{\sum_{l=1}^{100} \bar{D}_1 \cdot V_l}{\sum_{l=1}^{100} V_l}$$

Durch Auflösung der Arrheniusgleichung nach T erhält man die diffusive Coretemperatur T_C .

$$T_C = \frac{Q}{R \cdot \ln \frac{D_o}{D_{Core}}} \quad [K]$$

Die in Abbildung 14 dargestellte Temperatur für Cs-137 des Transportsatzes (b) ist nicht absoluter, sondern relativer Art und wird bestimmt durch die Wahl des Frequenzfaktors und der Aktivierungsenergie.

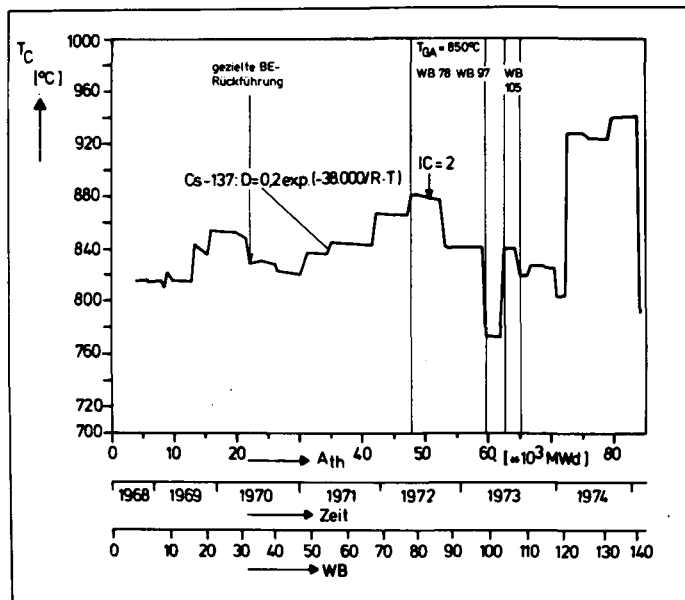


Abb. 14: Verlauf der diffusiven Coretemperatur für Cs-137

Innerhalb des Datensatzes können Abbrand-Umwälzzustände gleicher oder unterschiedlicher mittlerer Gasaustrittstemperatur nach ihrer diffusiven Coretemperatur unterschieden werden.

Dies soll am Beispiel eines Wechsels der Beschickungsstrategie von der statistischen zur gezielten BE-Rückführung gezeigt werden.

Bis WB 33 (Juni 1970) wurden die abgezogenen Brennelemente statistisch auf das Core rückgeführt, wobei das Verhältnis der mittleren Spaltstoffdichte von IC und AC dem aus Gleichgewichtsrechnungen ermittelten Optimalwert von 0,73 angenähert wurde. Mit Beginn der WB 33 dagegen wurden die höchst abgebrannten BE dem IC, die weniger stark abgebrannten dem AC zugeführt /22/. Die sich einstellende Abnahme der IC-Spaltstoffdichte hatte eine Senkung der Leistungsdichte und des radialen Temperaturprofils im IC zur Folge.

Tabelle 14 vergleicht die diffusiven Coretemperaturen vor und nach der Beschickungsstrategieänderung.

Trotz der von 760 °C auf 770 °C angehobenen mittleren Gasaustrittstemperatur sinkt die diffusive Coretemperatur ab.

Abbrand-Umwälz- zustand der	T_C °C	T_{Kan1} °C	T_{Kan2} °C	T_{Kan3} °C	T_{Kan4} °C	T_{Kan5} °C
WB 30 (April 1970) $T_{GA} = 760$ °C	849	861	910	834	749	667
WB 34 (August 1970) $T_{GA} = 770$ °C	829	830	897	829	744	671

Abb. 14: Kennzeichnung des Abbrand-Umwälzzustands durch die diffusive Temperatur

Die Verschiebung der Spaltstoffdichten hat eine zum AC hin abnehmende Verringerung der radialen diffusiven Temperatur zur Folge. Im äußersten Kanal steigt die Spaltstoffdichte und somit auch die diffusive Temperatur an.

Die radialen Veränderungen der diffusiven Temperatur werden in Abbildung 15 für verschiedene Zeitpunkte dargestellt.

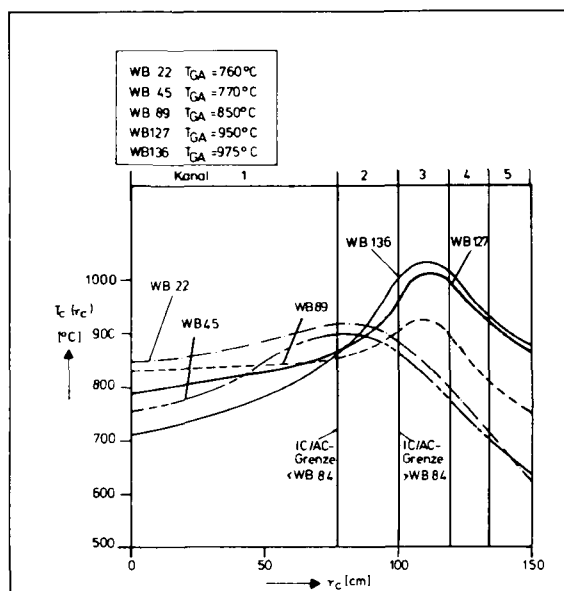


Abb. 15: Radiales diffusives Temperaturprofil

Mit zunehmender Betriebszeit verlagert sich aufgrund von Umstrukturierungen des Cores das Maximum der Temperatur in das Außencore. Parallel dazu wird das Innencore entlastet, und das Temperaturprofil flacht ab. Die Anhebung der Gasaustrittstemperatur auf 950 °C bzw. 975 °C verschiebt im wesentlichen das Maximum zu höheren Temperaturen, im IC dagegen sinkt die Temperatur weiter ab.

Diese für die diffusive Coretemperatur gezeigten Profile finden ihre Analogie in den Verschiebungen des radialen Gasaustrittstemperaturprofils, wie sie in /22/ von der Gruppe "Beschickungsrechnung" des AVR jährlich veröffentlicht werden.

Unterstellt man, wie in Kapitel 5.1.3.1 gezeigt wird, eine gleichsinnige Abhängigkeit zwischen errechneter Kühlgasaktivität und diffuser Coretemperatur, so folgt aus dem obigen Beispiel, daß die Darstellung der Kühlgasaktivität als Funktion der mittleren Gasaustrittstemperatur nur für kürzere Zeiträume mit definiertem Corezustand sinnvoll ist. Über längere Zeiträume können Veränderungen der Corestruktur die Abhängigkeit erheblich verfälschen, so daß eine vernünftige Interpretation nur bei Kenntnis der Corehistorie erfolgen kann. Wie Abbildung 14 zeigt, fallen die VAMPYR-Versuche bis Anfang 1975 in eine günstige Konstellation, da für gleiche Gasaustrittstemperaturen verschiedener Zeitpunkte ähnliche diffusive Coretemperaturen errechnet werden.

4 DIE KÜHLGASAKTIVITÄTSMESSUNGEN AM AVR

Das Freisetzungs- und Ablagerungsverhalten fester Spaltprodukte im HTR ist aufgrund der noch relativ geringen Betriebserfahrungen in weiten Bereichen unbekannt. Einen wesentlichen Beitrag bei der Klärung dieses Problemkreises liefert der AVR mit seinen drei unabhängigen Kühlgasaktivitätsmessungen im Primärkreis.

- Die γ -Aktivität der gasförmigen Isotope des Xenons und Kryptons wird kontinuierlich in einem Bypass des Primärkreises bestimmt.

Die Aktivität der festen Spaltprodukte wird diskontinuierlich gemessen:

- heißgasseitig am Coreaustritt nach Durchströmen des Deckenreflektors mit dem Experiment VAMPYR (V) und
- kaltgasseitig am Coreeintritt hinter dem Gebläse mit dem Kaltgasfilter (KF).

Für die Freisetzungsnachrechnung sind das VAMPYR- und Kaltgasfilterexperiment von besonderem Interesse. In erster Näherung lassen sich die VAMPYR-Meßergebnisse als freigesetzte Kühlgasaktivität des Gesamtcores und die des KF als Eintrittsaktivitäten des Kaltgases in das Core interpretieren.

Im folgenden werden VAMPYR- und KF-Experiment vor allem aus dem Blickwinkel der Freisetzungsnachrechnung betrachtet.

4.1 Das Heißgasexperiment VAMPYR

Der Name VAMPYR steht für "Versuchsanorung zur Messung der Spaltproduktfreisetzung aus pyrolytischem Kohlenstoff". Sie macht im Rahmen des HTR-Kugelhaufenkonzeptes Versuche zum Freisetzungs- und Ablagerungsverhalten fester Spalt- und Aktivierungsprodukte unter den

speziellen Randbedingungen eines Leistungsreaktors möglich. Damit sind die Ziele der Versuche festgelegt:

- Messung der im Reaktorbetrieb freigesetzten Aktivitäten, als Hinweis auf das Brennelementfreisetzungsverhalten,
- Untersuchungen zum Ablagerungsverhalten der Spalt- und Aktivierungsprodukte an verschiedenen Reaktorwerkstoffen (plate out) geben Aufschluß über die bei der Wartung von HTR-Primärkreis-komponenten zu erwartenden radiologischen Probleme.

Realistische Betriebsbedingungen, wie z. B. Anwesenheit von Graphitstaub und sein Einfluß auf den Transport der festen Spaltprodukte, sind ein wesentliches Kennzeichen dieser Versuche. Sie ergänzen und erweitern damit die bisher durchgeführten Bestrahlungs- und Ablagerungsexperimente an Einzelkugeln im Labormaßstab und in Bestrahlungsreaktoren.

4.1.1 Aufbau und Durchführung

Zur Entnahme möglichst heißen Kühlgases wurde VAMPYR I in ein Thermoelementhüllrohr über dem Deckenreflektor in Höhe der dritten Kohlesteinschicht eingebaut. Seine räumliche Lage ist in Abb. 16 dargestellt. Durch einen nachträglich eingefrästen Schlitz, 200 mm vom Seitenreflektor entfernt, wird ein Teilstrom von maximal $14 \text{ Nm}^3/\text{h}$ in das teilweise gekühlte Ablagerungsrohr eingesaugt und anschließend über zwei Filter zur Gasreinigungsanlage geleitet. In Abb. 17 ist der Versuchsaufbau schematisch dargestellt. Zu 99% werden die im Kühlgas vorhandenen Spalt- und Aktivierungsprodukte auf der durchströmten Oberfläche des gekühlten Probenrohres abgelagert, bzw. im 1. Filter aufgefangen. Im nachfolgenden Absolutfilter finden sich nur kleine Restaktivitäten /33/, die aus dem Zerfall der aufgefangenen Gasvorläufer herrühren.

Die geringe Konzentration der festen Spaltprodukte im Kühlgas macht eine Anreicherung in der Ablagerungsstrecke notwendig, so daß die

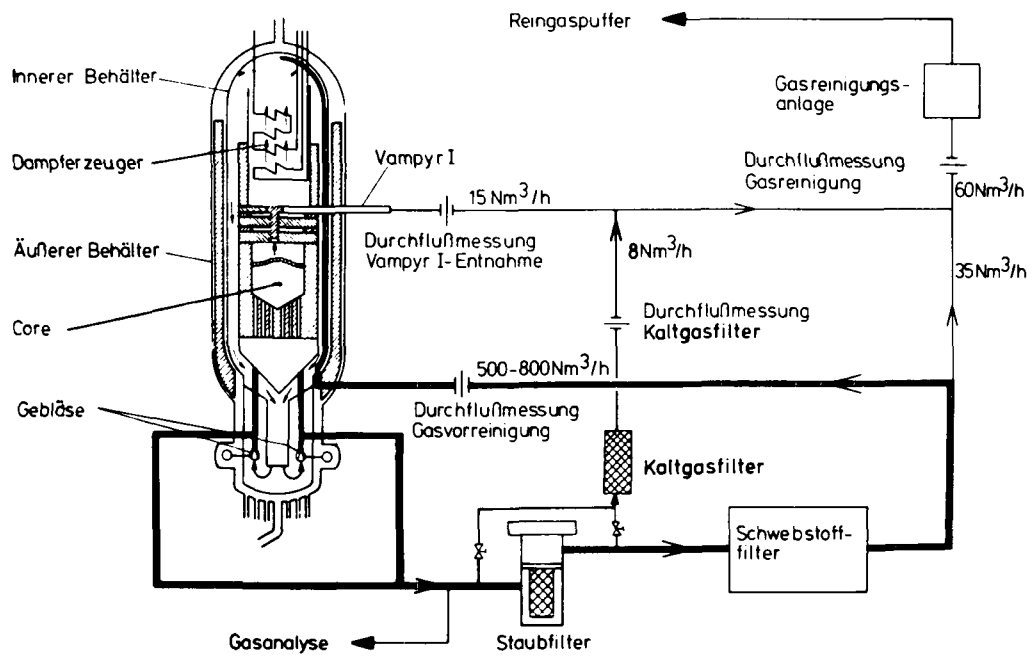


Abb. 16: Übersichtsschema des VAMPYR- und KF-Experimentes

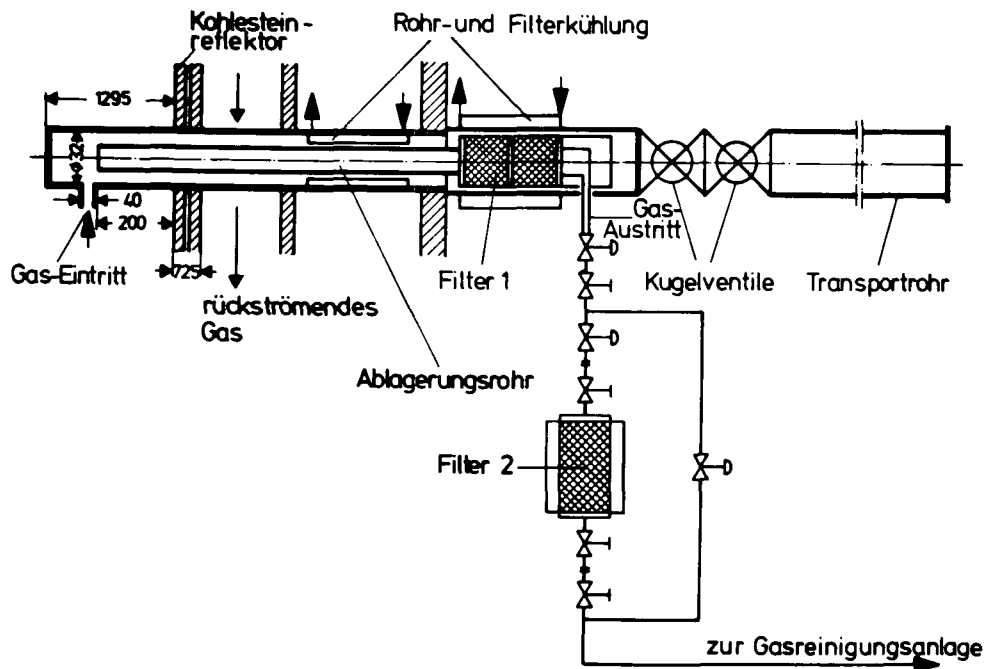


Abb. 17: Schema des VAMPYR-Heißgasexperimentes

Versuchsdauer sich über wenigstens 4 Wochen erstreckt. Im Versuchszeitraum werden der Gasmassendurchsatz durch das Core, der Teilgasstrom durch die Meßstrecke und die Kühlgasein- und -austrittstemperaturen konstant gehalten, um eine Zuordnung zwischen den thermohydraulischen Reaktorparametern und der Kühlgasaktivität herstellen zu können.

Nach Versuchsabschluß werden Entnahmerohr und Filter zerlegt. Sr-89 und Sr-90 werden durch β -Messungen, alle weiteren interessierenden Isotope γ -spektrometrisch bestimmt. Die sich anschließenden chemischen Behandlungen (Leaching) des Proberohres und der Filter dienen sowohl der Ablösung oberflächlich abgelagerter Isotope als auch der Abtragung einiger μm starker Rohrwandschichten. Diese Leachlösungen werden ebenfalls untersucht und mit der ersten Messung verglichen. Die Aktivität der Leachlösungen geben Aufschluß, ob, wo und mit welchem Konzentrationsprofil Spaltprodukte abgelagert und wandeinwärts diffundiert sind /34/.

Aufgrund der vollständigen Zurückhaltung der Spalt- und Aktivierungsprodukte in der Meßanordnung kann unter der Annahme einer über die Versuchsdauer konstanten Isotopenkonzentration im Heißgas bei bekanntem zeitintegrierten Massendurchsatz auf die spezifische Heißgasaktivität $\left[\text{Ci/Nm}^3 \right]$ bzw. Freisetzungsrate $\left[\text{Ci/s} \right]$ zurückgerechnet werden.

4.1.2 Der repräsentative Charakter der VAMPYR-Messung

Für den direkten Vergleich Messung - Rechnung interessiert, inwieweit der Meßwert repräsentativ für die gesamte Corefreisetzung ist.

Da weder Aktivitätsprofilmessungen über dem Coreradius vorliegen, noch das Mischungsverhalten des Heißgases über der Schüttungsoberfläche und im Deckenreflektor eindeutig bekannt ist, sind im wesentlichen qualitative Bewertungen möglich.

Die während der AVR-Planungs- und -Bauphase durchgeführten Modellversuche deuten auf eine Durchmischung des Heliums hin /35/.

Der geometrischen Lage entsprechend müßte die Ansaugung jedoch vor allem die äußeren Corebereiche $1000 \text{ mm} \leq r_{\text{Core}} \leq 1500 \text{ mm}$ erfassen, Abb. 17.

Zwei Erscheinungen sprechen für diese Annahme:

- Ab März 1975 stieg die Temperatur des rücklaufenden Kaltgases im Kaltgasringraum an /32/. Da die Gastemperatur am Dampferzeugeraustritt konstant blieb, muß die Temperatur der am Außenrand des Cores bzw. am Dampferzeugerhemd hochströmenden "Gasströhne" angestiegen sein, die sich anschließend mit dem abgekühlten Kaltgas mischt. Der Gastemperaturanstieg im äußeren Corebereich ist eine Folge der dort anwachsenden Spaltstoffdichte.
- Neue AVR-Messungen /31/ eines radial und azimuthal heterogenen Temperaturprofiles lassen ein entsprechendes Strömungsprofil erwarten.

Die Klärung dieser Frage muß einer ausführlichen thermohydraulischen Rechnung vorbehalten bleiben.

Im folgenden werden die VAMPYR-Messungen zunächst als repräsentative Gesamtfreisetzung interpretiert und dann direkt mit den SPAR-Rechnungen verglichen.

4.2 Das Kaltgasfilter-Experiment

Der ursprüngliche Zweck dieses Filters war die Messung der Staubanteile im Kühlgas. Mit Beginn der VAMPYR-Versuche wurden die Untersuchungen auf die staubgebundenen Aktivitäten ausgedehnt.

Mit den KF-Versuchen soll untersucht werden /36/:

- Welche Isotope im Kaltgas und mit welcher Konzentration vorhanden sind;
- in welcher Bindungsform - atomar, molekular, staubgebunden - die betreffenden Nuklide vorliegen;

- welche Ablagerungsgrade auf den Primärkreisoberflächen erreicht werden.

Um auch die molekular und atomar vorliegenden Nuklide sowie die Feinststäube zu erfassen, wurde den Tuchkerzenfiltern ein Absolutfilter nachgeschaltet. Die Graphitstaubmengen liegen im Bereich von $2 - 40 \cdot 10^{-6} \text{ g/Nm}^3$ /37/. Das Kaltgas tritt mit etwa 125°C in den Staubfilterbypass ein und verläßt die Filter mit etwa 50°C . Die KF-Einsätze werden in gleicher Weise wie die der VAMPYR-Versuche untersucht. Dabei ergeben sich spezifische Kaltgasaktivitäten $[\text{Ci/Nm}^3]$ bzw. $[\text{Ci/g}_{\text{Staub}}]$.

Die KF-Versuche geben einen Hinweis darauf, inwieweit die Annahme einer Null-Eintrittskonzentration in den Freisetzungsnachrechnungen gerechtfertigt ist.

4.3 Die Meßergebnisse

Von den mehr als 20 durchgeführten VAMPYR-Experimenten wurden zwölf bisher ausgewertet, von denen wiederum neun mit den Ergebnissen der Nachrechnung verglichen werden können.

Tabelle 15 zeigt eine Übersicht der ausgewerteten und für die Freisetzungsnachrechnung interessanten VAMPYR- und KF-Versuche.

Die Meßfehler bei der Cs-137-Aktivitätsbestimmung setzen sich zusammen aus dem Fehler der Peakanalyse, dem Einstellungsfehler für das benutzte Auswertungsverfahren sowie dem Eichfehler. Während der Eichfehler im allgemeinen kleiner als 20% ist, liegt der Fehler der Peakanalyse z. T. bei 100% /38,39/.

Sr-90 wie auch sein Tochternuklid Y-90 ($T_{1/2} = 64,8 \text{ h}$) sind reine β -Strahler, so daß die Sr-90-Aktivität nach seiner chemischen Abtrennung durch β -Zählung bestimmt werden muß. Aus den Erfahrungen am AVR wird bei der Sr-90-Aktivitätsmessung mit einem Fehler um 100% gerechnet /40/.

Versuchs- bezeichnung	Versuchszeitraum			T _{GA} [°C]
	Datum	WB	Std.	
V04	15.01.73 08.02.73	95 - 97	784	850
V06, KF05	02.04.73 15.05.73	99 - 102	1029	770
V07, KF06	01.07.73 06.08.73	105 - 107	817,5	850
V08, KF07	08.08.73 10.09.73	108 - 110	789,8	825
V09, KF08	19.09.73 22.10.73	111 - 113	799	825
V10, KF09	03.11.73 10.12.73	114 - 116	884,5	825
V11, KF10	12.12.73 21.01.74	117 - 120	951,8	800
V12, KF11	05.03.74 16.04.74	123 - 126	821,3	950
V13, KF12	18.04.74 27.05.74	127 - 129	938	950
V14, KF13/14 *	15.10.74 12.02.75	133 - 144	2305,5	950 - 970

* noch nicht ausgewertet

Tab. 15: Teilübersicht der VAMPYR- und KF-Experimente

In Tabelle 16 sind die VAMPYR- und KF-Ergebnisse für die Versuche V04/KF5 bis V13/KF12 mit wachsender Gasaustrittstemperatur dargestellt. Die Aktivität des Absolutfilters ist in den Werten nicht enthalten.

Versuch		$T_{GA} [^{\circ}C]$	spez. Kühlgasaktivität $[10^{-9} \text{ Ci/Nm}^3]$			
VAMPYR	KF		Cs-137		Sr-90	
V06	KF05	770	0,166	0,11	0,0239	0,001
V11	KF10	800	0,182	0,65	0,0504	/
V08	KF07	825	0,0939	0,07	0,0142	0,048
V09	KF08	825	0,273	0,11	0,01	0,033
V10	KF09	825	0,165	0,085	0,0173	0,11
V04	/	850	0,327	/	0,0139	/
V07	KF06	850	0,156	0,016	0,0057	0,0035
V12	KF11	950	0,94	0,276	0,305	1,8
V13	KF12	950	1,398	0,56	6,197	21,18

Tab. 16: Ergebnisse der VAMPYR- und KF-Experimente /37,41/

Wichtig für Freisetzungsbetrachtungen ist die Frage nach der Temperaturabhängigkeit der spez. Kühlgasaktivitäten. Abb. 18 stellt für Cs-137 und Sr-90 den spezifischen Aktivitätsverlauf beider Versuchsreihen als Funktion der mittleren Gasaustrittstemperatur dar.

Die stark streuenden Meßwerte zeigen in allen Fällen bis zu einer mittleren Gasaustrittstemperatur von $850^{\circ}C$ keine eindeutig erkennbare Temperaturabhängigkeit. Bei den $950^{\circ}C$ -Versuchen ergibt sich jedoch ein deutlicher Konzentrationsanstieg, der gegenüber den $850^{\circ}C$ -Werten für Cs-137 im Maximum das 40fache und für Sr-90 sogar das 6000fache beträgt. Die temperaturabhängigen Aktivitätsverläufe der Heiß- und Kaltgasversuche sind einander ähnlich.

Im tiefen Temperaturbereich wird die Temperaturabhängigkeit der Kühlgasaktivität durch die relativ zur Versuchsperiode lange Halbwertszeit gedämpft, da die Freisetzung allein über den temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten gesteuert wird und die Menge der freigesetzten

Atome (im Gegensatz zu Nukliden kurzer Halbwertszeit) praktisch unbeeinflusst bleibt.

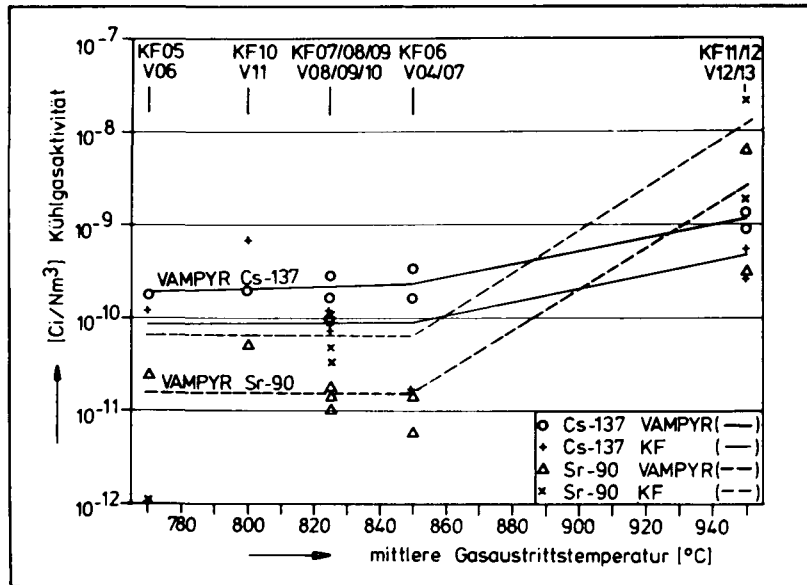


Abb. 18: Spezifische Aktivitäten der VAMPYR- und KF-Experimente

Bemerkenswert ist die hohe spezifische Kaltgasaktivität beider Isotope, die nur selten mehr als einen Faktor 2 unter der spezif. Heißgasaktivität liegt, bzw. für Sr-90 diese in der Mehrzahl der Fälle sogar übersteigt. Eine Erklärung für diese Erscheinung ließe sich nach /40/ in dem besonderen Diffusionsverhalten des Strontiums sowie in der unterschiedlichen Aufgabenstellung und Meßanordnung der Experimente finden.

Das KF-Experiment erfaßt integral die im Kaltgas mitgeführte Staubmenge. Atomares und molekulares Caesium bzw. Strontium werden nicht gefunden, da diese sich erwartungsgemäß an den kalten Stellen der Einbauten und in den etwa 25 m langen Rohrleitungen des KF-Experimentes, Abb. 16, niedergeschlagen haben. Die VAMPYR-Versuchseinrichtung mißt dagegen vor allem atomar-molekulare Aktivitätsanteile und nur einen differentiellen Staubanteil.

Liegt im Temperaturbereich unterhalb 850 °C - 950 °C der Hauptteil der Sr-90-Aktivität wegen der starken Rückhaltung im Graphit staub-

gebunden vor, so tritt dies bevorzugt als Erhöhung der spezifischen Kaltgasaktivität in Erscheinung. Die VAMPYR-Anordnung dagegen erfaßt die geringere freigesetzte Aktivität einschließlich eines differentiellen, auch zufallsabhängigen Staubanteils, dessen jeweilige Stärke ihrerseits für den Schwankungsbereich innerhalb der Messung verantwortlich wäre.

Inwieweit nun der ins Core rückgeführte Staub durch De- und Adsorptionserscheinungen zum Aufbau eines Partialdruckes führt, ist weitgehend unbekannt, da weder die Verweilzeit des rückgeführten Staubes im Kugelhaufen noch das Löslichkeitsverhalten der staubgebundenen SP quantitativ bekannt sind. Die Richtigkeit der angenommenen Nulleintrittskonzentration (Kapitel 2.4.2) wird somit aus den KF-Ergebnissen nicht eindeutig beantwortet.

Eine ausführliche Beschreibung und Darstellung der Kaltgasexperimente am AVR findet sich in /42/.

4.3.1 Die Bedeutung der VAMPYR-Versuche für die Freisetzungsrechnung

Trotz vieler Bestrahlungsexperimente zur Bestimmung der SP-Transportdaten war bisher ein direkter Vergleich zwischen errechneter und gemessener Corefreisetzung wegen fehlender Meßdaten nicht möglich.

Mit dem VAMPYR-Experiment kann nun die Rechnung an den Messungen kontrolliert werden, um

- Rückschlüsse auf die Güte der Transportdaten,
- Aussagen über das Rechenmodell

zu machen. Bei genügender Übereinstimmung können die VAMPYR-Meßergebnisse eingehender interpretiert werden.

Besondere Aussagekraft haben in diesem Zusammenhang diejenigen Experimente, die bei gleicher Gasaustrittstemperatur und mit ähnlichen Versuchsparametern gefahren wurden. In diesen Fällen sind die quasikonstanten thermodynamischen Kenngrößen von den variablen Parametern,

z. B. der Beschickung, entkoppelt, so daß die Meßergebnisse in einen präziseren Zusammenhang zum Abbrand-Umwälzzustand des Cores gestellt werden können.

5 EINSATZ DES RECHENMODELLS FÜR DIE AVR-BETRIEBSZEIT VON 1968 BIS 1975

Im folgenden werden die Ergebnisse der AVR-Freisetzungsnachrechnung für Cs-137 und Sr-90 vorgestellt, wobei der Schwerpunkt auf die Darstellung des betriebszeitabhängigen Freisetzungsverhaltens gelegt wird. Die Ergebnisse der Rechnung werden mit denen der VAMPYR-Messung verglichen.

Durch Änderungen in der Abbrandmeßanlage ist der Stand der Rechnung auf den Zeitraum bis WB 143 (Februar 1975) begrenzt, was etwa 7 Reaktorbetriebsjahren oder 1950 Volllasttagen entspricht. Die mit der Verbesserung der Abbrandunterscheidung einhergehende Änderung in der Beschickungsstrategie führte zu einer weitergehenden Differenzierung des Beschickungsteils im Rechenmodell. Die dazu notwendigen programmtechnischen Arbeiten werden in Kürze zur Verfügung stehen /43/ und können in SPAR integriert werden.

5.1 Der Aufbau des Spaltproduktinventars

Eine entscheidende Bedingung für die zeitliche Verfolgung der Freisetzung liegt in der Erfassung des Spaltproduktaufbaues. In Abbildung 19 ist das Anwachsen des Cs-137- und Sr-90-Inventars über die thermische Arbeit aufgetragen.

Der Inventaraufbau beider Isotope zeigt wegen ihrer langen Halbwertszeit bis zur WB 100 (April 1973) ein nichtsättigendes Verhalten. Die folgende gezielte bzw. kontinuierliche Entnahme abgebrannter Brennelemente läßt das Inventar in einen Quasigleichgewichtszustand einschwingen, in dem der Aufbau aus Spaltung und Rückführung durch die Entnahme kompensiert wird. Die so erreichte Quasigleichgewichtsmasse liegt bei etwa 1215 g Cs-137 und 740 g Sr-90. Vor und während der bei WB 115 (Dezember 1973) einsetzenden GLE-BE-Zugabe werden 1,5mal soviel abgebrannte BE entnommen wie zugegeben, was kurzfristig zu einer leichten Abnahme des Inventars führt. Der weitere Inventaraufbau wird

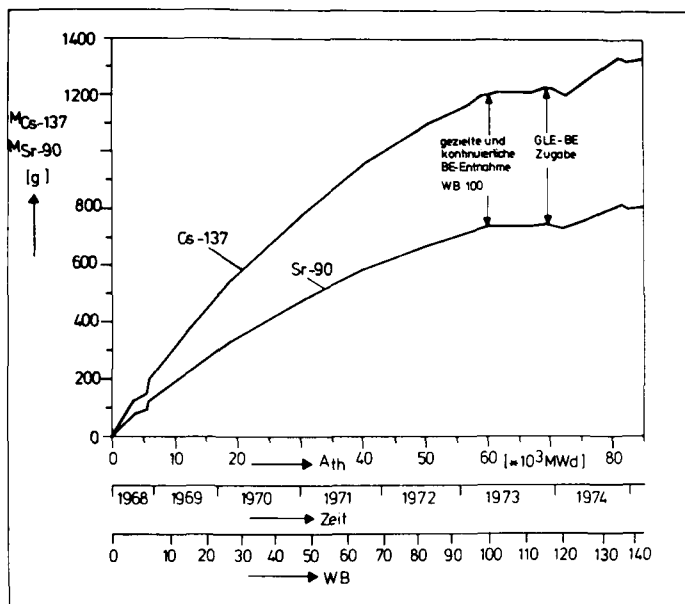


Abb. 19: Verlauf des Cs-137- und Sr-90-Inventars

zum einen durch die um 1,1 - 1,6 höhere Zugabe-/Entnahmerate und zum anderen durch die Unschärfe der Abbrandunterscheidungsmessung bewirkt. Mit sinkender Zahl der die Meßanlage erreichenden hoch abgebrannten Erstcore-Brennelemente werden vermehrt BE geringeren Abbrands entnommen. Beide Effekte verursachen einen Inventaranstieg. Am Ende der Rechnung haben die Massen ein neues Quasigleichgewichtsniveau von etwa 1330 g Cs-137 und 808 g Sr-90 erreicht.

Für die Freisetzungsbetrachtung ergeben sich daraus folgende Schlußfolgerungen:

- Die Beschreibung der Freisetzung ist in der nichtsättigenden Phase hauptsächlich mit dem FR-Wert möglich.
- Im quasistationären Inventarzustand ist neben dem FR-Wert auch der R/B-Wert sinnvoll definiert, da mit diesem die momentane Freisetzung der jeweiligen WB beschrieben werden kann.

5.2 Die BE-Typen-Anteile und ihre Verteilung

Wegen der unterschiedlichen BE-Typ-Kontamination müssen auch die absoluten bzw. anteiligen Anzahlen der im Core vorhandenen Brennelementtypen betrachtet werden.

Zu Beginn des Reaktorbetriebes enthielt das Core etwa 26000 Erstcore-Brennelemente und etwa 68000 Graphitkugeln. Bis zum Ende des Nachrechnungsintervalles stieg die nominelle BE-Zahl im Rechenmodell auf etwa 89500, die der Graphitkugeln sank auf ca. 4500.

Im folgenden werden die anteiligen, BE-Typ-spezifischen Größen in zwei Darstellungsarten vorgestellt.

In der typweisen Einzeldarstellung lassen sich die zeitlichen Schwankungen eingehend nachvollziehen, während aus der Summendarstellung vor allem der zeitliche Anteilverlauf deutlich wird.

Abbildung 20 zeigt die zeitliche Änderung der BE-Typen-Anteile.

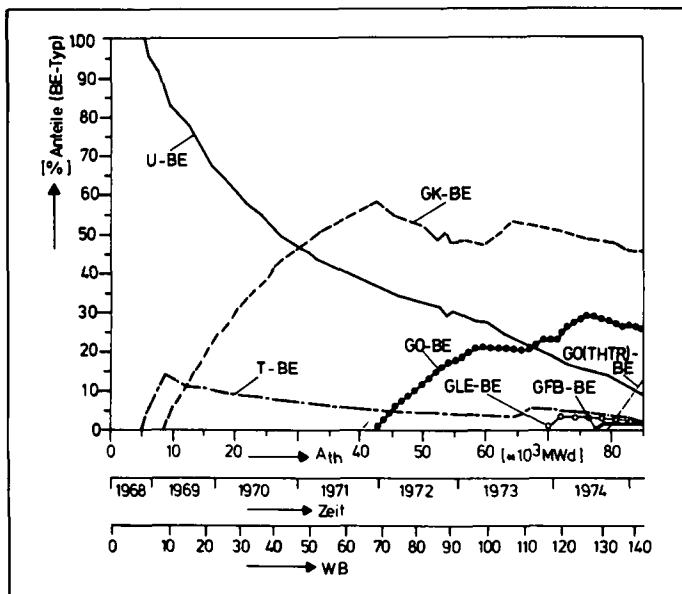


Abb. 20: Verlauf der BE-Typen-Anteile

Der Anteil der Erstcore-Brennelemente sinkt durch die Zugabe der GK- und GO-BE kontinuierlich auf etwa 10%, die ihrerseits auf 50% bzw. 25% der BE-Gesamtzahl ansteigen. Die 2500 GLE-BE repräsentieren etwa 3%

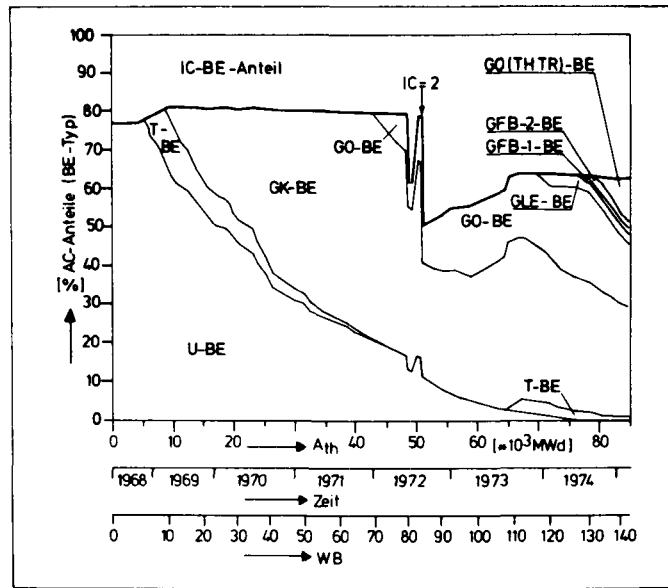


Abb. 21: Verlauf der BE-Typen-Anteile im AC

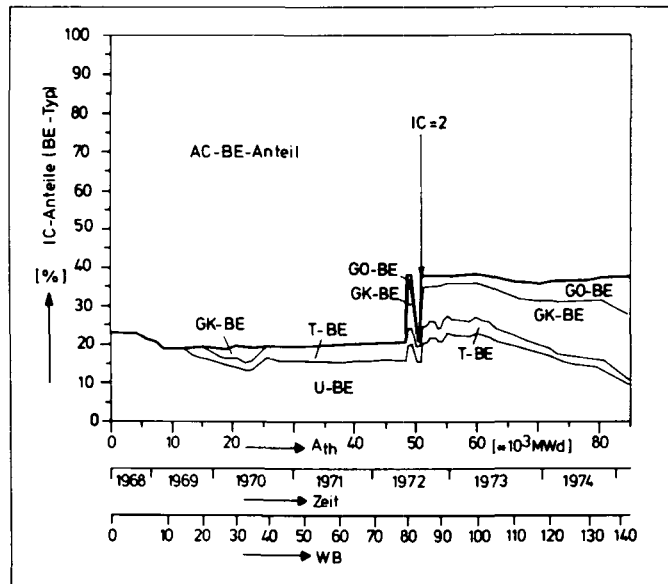


Abb. 22: Verlauf der BE-Typen-Anteile im IC

der Brennelemente.

Nicht allein die absolute bzw. relative Anzahl der BE-Typen, sondern auch ihre räumliche Lage im Core beeinflussen wegen des radialen und axialen Temperaturprofiles das Freisetzungsverhalten.

In den folgenden zwei Abbildungen wird die räumliche Verteilung der relativen BE-Typ-Anzahlen grob nach ihrer Lage in Innencore (IC) bzw. Außencore (AC) unterschieden. Die Außencoreverteilung der Abbildung 21 zeigt einen BE-AC-Anteil von etwa 80%, der mit der Innencoreerweiterung auf 2 Kanäle (IC = 2) ab WB 85 (Sept. 1972) auf etwa 60% sinkt. Entsprechend der Beschickungsstrategie, die die Zuladung der frischen BE auf das AC vorsieht, sind im Außencore alle BE-Typen enthalten, wobei die GK-Brennelemente im Maximum mit 60% und im Verlauf der VAMPYR-Versuche abnehmend auf 30% vertreten sind. Im Bereich des Innencores dagegen sind nach Abbildung 22 vor dessen Vergrößerung hauptsächlich U- und T-BE vertreten, die jedoch in zunehmenden Maße von rückgeführten GK- und GO-BE ersetzt werden. Am Ende der Nachrechnung haben die GK- und GO-Brennelemente im IC einen Gesamtbrennelementanteil von 17% bzw. 9%.

Angaben über den Verlauf der absoluten BE-Zahlen finden sich in /12/.

Aus der Betrachtung der relativen und räumlichen BE-Verteilung lassen sich folgende Punkte festhalten:

- Die hoch kontaminierten GK-BE sind ihrer Zahl nach sowohl im Core als auch räumlich verteilt im IC und AC am häufigsten vorhanden.
- Das AC überragt das IC nach seiner absoluten BE-Zahl und in der Art der BE-Typen-Verteilung.

5.3 Die spezifische Kühlgasaktivität

Wichtigstes Ergebnis der AVR-Freisetzungsnachrechnung ist wegen der Vergleichbarkeit mit den VAMPYR-Meßwerten die in Gl. (10) definierte spezifische Gesamtkühlgasaktivität K_C , deren zeitlicher Verlauf für

Cs-137 in Abbildung 23 und für Sr-90 in Abbildung 24 wiedergegeben ist.

Verglichen mit den Messungen errechnen die Cs-137-Datensätze in einem fast parallelen Verlauf eine höhere, die Sr-90-Daten dagegen eine niedrigere Kühlgasaktivität.

Bis WB 84 (Sept. 1972) zeigen die spezifischen Aktivitäten beider Isotope eine ansteigende Tendenz, die nur kurzfristig nach WB 32 (Juli 1970) etwas abflacht. Ursache des Anstieges sind die Leistungserhöhungen auf 38 MW bzw. 46 MW, die Anhebung der Gasaustrittstemperatur auf 790 °C, 800 °C, 830 °C bzw. 850 °C, der ansteigende Abbrand des Brennstoffs sowie die absolute BE-Zunahme aufgrund des Abzugs der Graphitkugeln. Die zwischenzeitliche Abflachung fällt mit dem bei der Einführung der diffusiven Coretemperatur besprochenen Wechsel der Beschickungsstrategie von der statistischen auf die gezielte BE-Rückführung zusammen.

Um den Reaktor auch bei mittleren Gasaustrittstemperaturen bis 950 °C betreiben zu können, vergrößerte man das Innencore auf 2 Kanäle (>WB 84). Dabei wurde das Temperaturmaximum nach außen verschoben und das radiale Temperaturprofil abgeflacht. Bei konstanter Gasaustrittstemperatur von 850 °C senkt sich die Kühlgasaktivität um annähernd eine Größenordnung. Die ab WB 123 (März 1974) auf 950 °C angehobene Gasaustrittstemperatur und der Einfluß der Temperaturverteilung bei $T_{GA} = 975$ °C lassen die Aktivitäten beider Isotope wiederum stark ansteigen.

Was den Vergleich mit den VAMPYR-Versuchen betrifft, so zeigen die Abbildungen für Caesium in der Regel Übereinstimmungen innerhalb einer Größenordnung. Für Sr-90 dagegen ergibt sich ein Schwankungsbereich, der im Maximum bis zu 1,5 Größenordnungen reicht.

Um den Einfluß der zunehmenden BE-Anzahlen zu eliminieren, bzw. die Wirkung des Abbrand-Umwälzzustandes sowie seiner Leistungs- und Temperaturgeschichte auf die Spaltproduktfreisetzung sichtbar zu machen, zeigen die folgenden Abbildungen 25 und 26 den auf die jeweilige BE-Anzahl und die Anfangskühlgasaktivität normierten zeitlichen Aktivitätsverlauf.

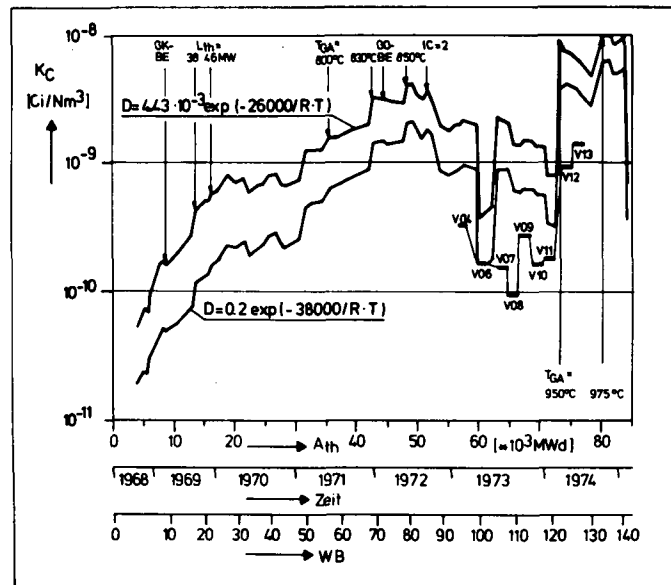


Abb. 23: Verlauf der Cs-137-Kühlgasaktivität

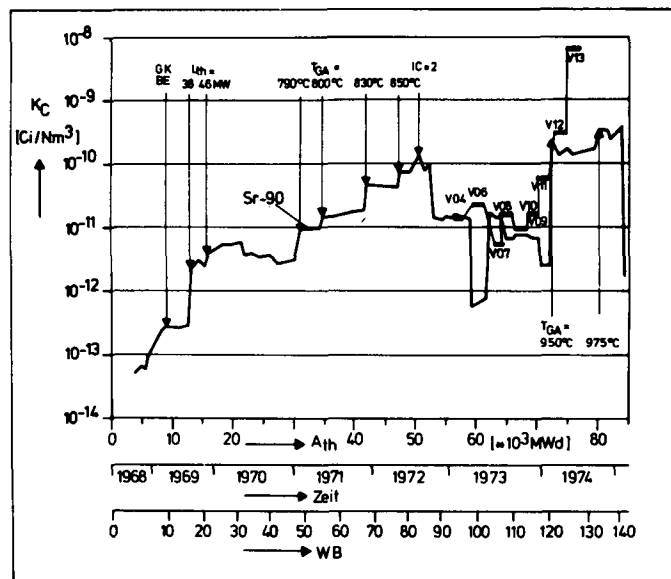


Abb. 24: Verlauf der Sr-90-Kühlgasaktivität

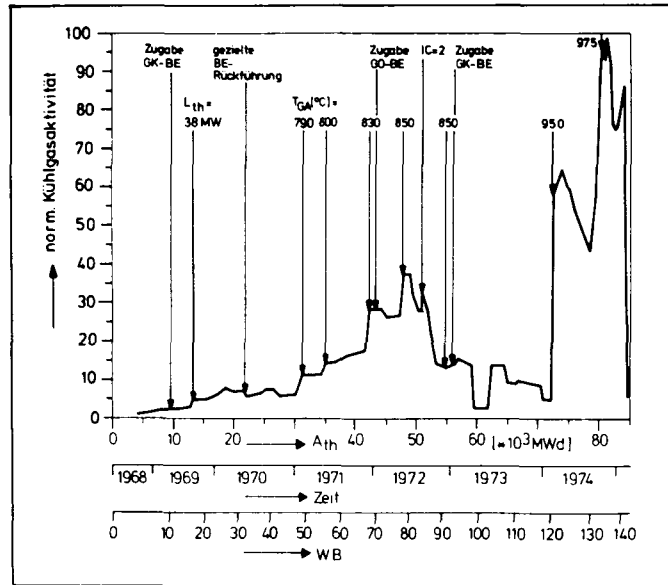


Abb. 25: Normierte Cs-137-Kühlgasaktivität

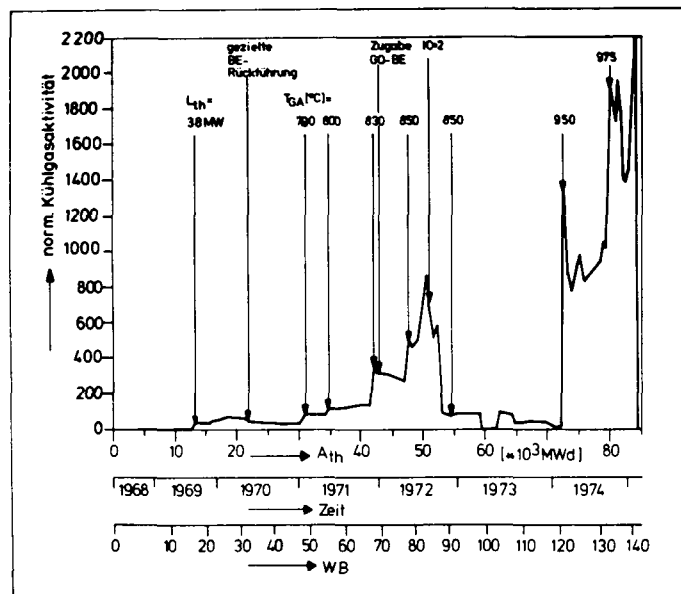


Abb. 26: Normierte Sr-90-Kühlgasaktivität

Für beide Isotope sind die Erhöhungen der Gasaustrittstemperatur mit einer sprunghaften Zunahme der freigesetzten Aktivität verbunden. Dabei reagiert das Sr-90 jedoch wesentlich empfindlicher auf den Einfluß der veränderten Temperaturverteilung. Vom Nachrechnungsbeginn bis zur Innencoreverbreiterung steigt die normierte Caesiumaktivität auf etwa das 40fache an, während sich die des Sr-90 auf das 900fache erhöht. Der durch die IC-Verbreiterung veränderte Abbrand-Umwälzzustand führt trotz erhöhter Gasaustrittstemperatur zu einem dem Zustand bei Betriebsbeginn ähnlichen Freisetzungsniveau.

Bemerkenswert ist die Veränderung der Kühlgasaktivität bei der Einführung eines neuen BE-Typs.

Beide Isotope reagieren auf die Zugabe der niedrig kontaminierten GO-BE (WB 70, Dez. 1971) mit einer um etwa 2 - 3 WB verzögerten Abnahme der Kühlgasaktivität. Der Verzögerungszeitraum ist dabei abhängig von der für eine spürbare Änderung notwendig zuzuführenden BE-Zahl - ca. 3% - , die ihrerseits durch die spezifische Typenkontamination und die räumliche Lage der freisetzungintensiven Coreregionen mitbestimmt wird. Da diese im oberen Drittel des Cores liegen, hat der neue BE-Typ den Bereich maximaler Temperatur schon nach 2 - 3 WB erreicht bzw. bereits durchlaufen.

Die anschließenden Gasaustrittstemperaturen von 950 °C bzw. 975 °C erhöhen die normierte Aktivität auf das 80fache (Cs-137) bzw. um mehr als 3 Größenordnungen (Sr-90).

Es lassen sich somit für das AVR-Core drei Einflußgruppen unterscheiden:

- Temperatur- und Leistungserhöhungen üben die größte Wirkung auf die freigesetzte Aktivität aus.
- Die Beschickungsstrategie bzw. der daraus resultierende Abbrand-Umwälzzustand beeinflussen die Kühlgasaktivität in erheblichem Maße.

- Die Zugabe unterschiedlich stark kontaminierter BE führt zu einer kleinen, jedoch in relativ kurzen Zeiträumen merkbaren Veränderung der Kühlgasaktivität.

Insgesamt bestätigt dieser qualitative Überblick die Anwendungsfähigkeit des Rechenmodells und seiner Daten für die AVR-Corefreisetzung.

5.3.1 Die spezifische Kühlgasaktivität als Funktion der diffusiven Coretemperatur

Bisher wurde die diffusive Coretemperatur allein zur Beschreibung des Abbrand-Umwälzzustandes verwendet. Inwieweit läßt sich nun ein Zusammenhang zwischen Kühlgasaktivität und diffusiver Temperatur herstellen?

Zu diesem Zweck werden die Corezustände der WB 78 (Juni 1972) und WB 97 (März 1973) miteinander verglichen. Wie Abbildung 12 zeigt, wurde der Reaktor in beiden Fällen mit 850 °C mittlerer Gasaustrittstemperatur betrieben und ebenso im Rechenmodell, Abbildung 13, simuliert.

In Tabelle 17 werden die integrale und nach Kanälen unterschiedene diffusive Temperatur T und Kühlgasaktivität K beider WB-Zeitschritte gegenübergestellt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird die Darstellung auf den Datensatz (b) des Cs-137 beschränkt. Ein entsprechender Zusammenhang läßt sich ebenso für Datensatz (a) und Sr-90 aufstellen.

	Größe	Core	Kanal 1	Kanal 2	Kanal 3	Kanal 4	Kanal 5	Einheit
WB 78	T	880	760	978	901	812	743	°C
$T_{GA} = 850^{\circ}\text{C}$	K	20,6	0,104	16,4	2,84	0,891	0,346	10^{-10} Ci/Nm^3
WB 97	T	840	745	824	933	866	799	°C
$T_{GA} = 850^{\circ}\text{C}$	K	9,35	0,179	0,697	4,54	2,75	1,18	10^{-10} Ci/Nm^3

Tab. 17: Zusammenhang zwischen Kühlgasaktivität (Cs-137) und diffusiver Temperatur

Die diffusive Coretemperatur sowie die der Kanäle 1 und 2 sind um bis zu 16% (Kanal 2) gesunken, die Temperaturen der äußeren 3 Kanäle dagegen angestiegen. Die Ursache für diese starke Verschiebung liegt in der Erweiterung des Innencores auf 2 Kanäle (in Abb. 14, 24 und 25 durch IC = 2 gekennzeichnet), um eine Abflachung des radialen Temperaturprofiles zu erreichen. Mit dem Absinken der diffusiven Coretemperatur ist eine Abnahme der Gesamtaktivität um den Faktor 2 verbunden. Dieses Verhalten spiegelt sich mit einer Ausnahme in den gleichartigen Verläufen der einzelnen Kanalaktivitäten wieder. Entsprechend dem diffusiven Temperaturverlauf steigt die Aktivität der äußeren Kanäle an, die des 2. Kanals nimmt verstärkt (Faktor 20) ab.

Das gegenläufige Verhalten einer ansteigenden Kühlgasaktivität bei absinkender diffusiver Temperatur im ersten Kanal läßt sich hierbei eindeutig als Folge der veränderten Beschickungsstrategie interpretieren, in deren Verlauf dem ersten Kanal abgebrannte GK- und GO-Brennelemente mit nur noch geringer Leistung zugeführt wurden.

BE-Typ	$K_{\text{Kanal 1}} = f(\text{BE-Typ})$		$K_{\text{Kanal 2-5}} = f(\text{BE-Typ})$	
	$\left[\cdot 10^{-10} \text{ Ci/Nm}^3 \right]$		$\left[\cdot 10^{-10} \text{ Ci/Nm}^3 \right]$	
	WB 78	WB 97	WB 78	WB 97
U	0,071	0,032	0,951	0,123
T	0,033	0,008	-	0,028
GK	-	0,136	19,399	8,752
GO	-	0,003	0,137	0,263
Summe	0,104	0,179	20,477	9,166

Tab. 18: Radiale, typabhängige Kühlgasaktivität zweier WB bei gleicher Gasaustrittstemperatur

Nach Tabelle 18 und Abbildung 22 enthielt der erste Kanal (IC) zum Zeitpunkt der WB 78 keine GK- und GO-BE. Erst mit Verbreiterung des IC wurden Brennelemente dieser Art rückgeführt, so daß in WB 97 die

abgesunkene Freisetzung aus den U- und T-BE durch den Aktivitätsanteil der GK-BE überkompensiert wird.

Somit ist eine sinnvolle Zuordnung zwischen Kanalfreisetzung und entsprechender diffusiver Temperatur nur für gleichartige Abbrand-Umwälzzustände möglich. Weiterhin wird bestätigt, daß die mittlere Gasaustrittstemperatur im Falle von Coreveränderungen kein verlässliches Maß für die Kühlgasaktivität darstellt.

Der bisher an einem Einzelbeispiel gezeigte Zusammenhang wird in Abbildung 27 auf die gemessenen und berechneten Ergebnisse der interessierenden VAMPYR-Experimente ausgedehnt. Da sich die diffusive Temperatur aus der Arrheniusgleichung herleitet, wurde für die Abszisse eine $1/T$ -Abhängigkeit gewählt.

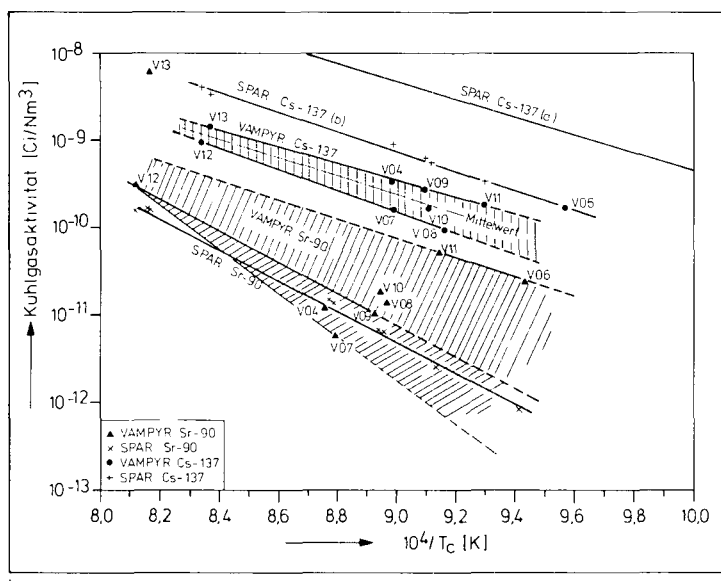


Abb. 27: Kühlgasaktivität als Funktion der diffusiven Coretemperatur im Zeitraum der VAMPYR-Versuche

Der charakteristische Geradenverlauf der errechneten Kühlgasaktivität bestätigt die erwartete exponentielle, jedoch umgekehrt proportionale Temperaturabhängigkeit. Aus der Eindeutigkeit dieser Zuordnung folgt

darüberhinaus, daß die diffusive Coretemperatur den Abbrand-Umwälzzustand in Hinblick auf das Freisetzungsverhalten sinnvoll beschreibt. Die Abweichungen von diesem Geradenverlauf werden z. B. durch die unterschiedlichen BE-Typ-Kontaminationen oder die nicht leistungsabhängige Freisetzung teilabgebrannter, rückgeführter Brennelemente verursacht.

Überträgt man diese Zuordnung auf die VAMPYR-Meßergebnisse, so bestätigt sich innerhalb eines Unschärfebereiches diese Abhängigkeit.

Besonders eindeutig gilt dies für Cs-137. Durch die verhältnismäßig geringe Schwankungsbreite der Meßergebnisse bei gleicher mittlerer Gasaustrittstemperatur (Faktor 3) ordnen sich die Meßpunkte in dieser Darstellung linear an, wobei eine Messung (V06, $T_{GA} = 770^{\circ}\text{C}$) nicht einzuordnen ist.

Eine entsprechende Darstellung ist im Falle des Sr-90 nicht möglich. Hier lassen sich allein die Versuche V11 und V06 in einen zur Rechnung sinnvollen Geradenverlauf einordnen, der als obere Grenze anzusehen wäre. Der Mangel an weiteren Meßpunkten verhindert jedoch eine präzisere Zuordnung. Mit Ausnahme von V06 (770°C), V11 (800°C) und V13 (950°C), die im Vergleich zur Rechnung eine wesentlich zu hohe Kühlgasaktivität aufweisen, unterscheiden sich die restlichen Messungen verhältnismäßig wenig von der Rechnung. Die beiden unteren Geraden sollen mögliche untere Verläufe einer temperaturabhängigen Kühlgasaktivität aufzeigen.

Die scheinbare Temperaturunabhängigkeit der VAMPYR-Messungen bis zu einer mittleren Gasaustrittstemperatur von 850°C , Abbildung 18, bestätigt sich in dieser Darstellung nicht. Entsprechend den Ergebnissen der SPAR-Rechnung zeigen die Messungen eine stetige wenn auch schwache, Zunahme der Kühlgasaktivität. Dabei ist eine qualitative Ähnlichkeit zwischen errechnetem und gemessenem temperaturbezogenem Aktivitätsgradienten festzustellen.

5.3.2 Der Vergleich zwischen Rechnung und Messung

Im vorangegangenen Teil wurde gezeigt, daß bei geeignet definierter Bezugstemperatur auch die VAMPYR-Meßwerte temperaturabhängig einzuordnen sind.

Die unter alleiniger Betrachtung der mittleren Gasaustrittstemperatur anscheinend regellosen Schwankungen der Kühlgasaktivität sind somit teilweise dem Abbrand-Umwälzzustand zuzuordnen. Darüberhinausgehende, erhebliche Unterschiede lassen auf weitere Einflußgrößen, wie z. B. die Graphitstaubmengen und die an sie gebundenen Aktivitäten, schließen. In dem Vergleich Rechnung - Messung werden deshalb die außerhalb der aufgezeigten Bandbreite liegenden Versuche, Abbildung 26, weniger stark bewertet.

5.3.3 Staubanteil und Kühlgasaktivität

In Kapitel 4.3 wurde auf den im Staub mittransportierten Aktivitätsanteil hingewiesen. Im Rahmen dieser Arbeit kann auf die damit verbundenen Ergebnisse nur qualitativ eingegangen werden. Eine ins einzelne gehende Darstellung soll in /44/ gegeben werden.

Für beide Nuklide liegen die Kühlgasaktivitäten von V06, V11, und mit Einschränkung V13, im oberen Bereich der Ergebnisfelder, während sich im unteren Randgebiet die Versuche V08, V10, V07 und V12 gleichermaßen wiederfinden. V09 und V04 ordnen sich für die Cs-137 am oberen Rand, für Sr-90 im unteren Teil ein, Abbildung 26.

Phänomenologisch fällt auf, daß hohe VAMPYR-Kühlgasaktivitäten in der Regel eine hohe Staubmasse und KF-Aktivität, niedrige eine geringe Staubmasse und KF-Aktivität aufweisen. Dieser empirische Zusammenhang ist nach Tabelle 19 für die Staubmassen deutlicher ausgeprägt als für die KF-Aktivitäten, siehe V12.

Aus der empirischen Anschauung lassen sich die VAMPYR-Meßergebnisse als Zusammenwirken von diffusiv freigesetzten, atomar-molekularen Aktivitäten einerseits und staubgebundenen Aktivitäten andererseits er-

Versuch	Masse Staub [g]	staubnormierte KF-Kühlgasaktivität	
		Cs-137	Sr-90
		[10^{-6} Ci/g]	[10^{-6} Ci/g]
V11	20,14	18,86	-
V13	9,25	30,16	1117,66
V08	5,98	6,06	3,91
V09	5,77	9,57	2,93
V10	6,15	7,39	9,26
V07	1,25	6,63	1,43
V12	0,828	145,58	350,12

Tab. 19: Zusammenstellung der Staubmassen und KF-Aktivitäten

klären. Ein Teil des eingesaugten Staubes wird als Filteraktivität erfaßt. Darüberhinaus ist der quantitative Staubaktivitätsanteil nicht eindeutig bestimmbar, so daß eine explizite Separierung dieser beiden Komponenten nicht erfolgen kann und der folgende Vergleich, was den Staubeinfluß anbelangt, auf qualitative Wertungen beschränkt bleiben muß.

5.3.4 Die Cs-137-Kühlgasaktivität

In Tabelle 20 sind die Ergebnisse der VAMPYR-Versuche denen der Rechnung mit beiden Datensätzen gegenübergestellt. Die Zeilen "Faktorabweichung" geben dabei das Verhältnis Rechnung zu Messung wieder.

Die Kühlgasaktivitäten des Datensatzes (b) kommen den Meßwerten am nächsten, wobei die Abweichung zwischen annähernder Übereinstimmung (V06, $T_{GA} = 770$ °C) und einem Faktor 6 (V08, $T_{GA} = 825$ °C) liegt. Die Werte des Datensatzes (a) ihrerseits sind im Vergleich zu denen von (b) zu Beginn um das 2,5fache höher. Mit wachsenden Gasaustrittstemperaturen nähern sich die Ergebnisse der Datensätze wegen der unterschiedlichen Aktivierungsenergien an (Faktor 1,7; $T_{GA} = 950$ °C).

Ausgangspunkt des Vergleiches ist der Versuch V06, der bei einer mitt-

Versuch	V06	V11	V08	V09	V10	V04	V07	V12	V13	Einheit
T _{GA}	770	800	825	825	825	850	850	950	950	°C
T _C	772	803	819	827	825	840	840	927	923	°C
VAMPYR Cs-137	0,166	0,182	0,0939	0,273	0,165	0,327	0,156	0,94	1,398	10 ⁻⁹ Ci/Nm ³
SPAR (b) D ₀ = 0,2 Q = 38000	0,169	0,326	0,594	0,624	0,565	0,946	0,887	3,989	3,267	10 ⁻⁹ Ci/Nm ³
Faktor- Abweichung	1,02	1,79	6,33	2,29	3,45	2,89	5,69	4,24	2,34	-
SPAR (a) D ₀ =4,43·10 ⁻³ Q = 26000	0,404	0,796	1,381	1,49	1,326	2,096	2,083	6,986	5,56	10 ⁻⁹ Ci/Nm ³
Faktor- Abweichung	2,43	4,37	14,7	5,46	8,04	6,41	13,35	7,43	3,98	-

Tab. 20: Vergleich der VAMPYR- und SPAR-Aktivitäten des Cs-137

leren Gasaustrittstemperatur von 770 °C betrieben wurde. Es liegt eine annähernde Übereinstimmung mit dem Ergebnis des Datensatzes (b) bzw. eine Faktorabweichung von etwa 2,5 gegenüber (a) vor. Im Vergleich zu den übrigen Versuchen ist dieser Meßwert jedoch überrepräsentiert, was in Abbildung 27 durch seine Lage außerhalb des Ergebnisfeldes deutlich wird. Die Kühlgasaktivität dieses Versuches ist um bis zu 77% höher als die zweier 825-°C-Versuche bzw. übersteigt eine 850-°C-Messung (V04) immer noch um 6%. V06 ist deshalb für eine Bewertung nicht geeignet.

Die Versuche V11 (800 °C), V09 (825 °C), V04 (850 °C) und V13 (950 °C) zeigen für (b) eine Faktorabweichung kleiner als 3 und für (a) kleiner als etwa 6,5. Sie repräsentieren somit diejenige Gruppe von Versuchen, die den Ergebnissen der Rechnung am nächsten kommen. In Abbildung 27 ordnet sich diese Gruppe in den typischen Geradenverlauf ein und bildet den oberen Rand des Ergebnisfeldes.

Die verhältnismäßig kleine Faktorabweichung des Versuches V13 täuscht jedoch eine ungerechtfertigte Übereinstimmung vor, die durch zwei gegensätzliche Erscheinungen verursacht wird: In der Rechnung nimmt die Kühlgasaktivität im Verlauf der aufeinanderfolgenden 950-°C-Versuche

ab, was sich auch in einem Absinken der diffusiven Temperatur ausdrückt. Demgegenüber steigt die gemessene Kühlgasaktivität des Versuches V13 auf das 1,5fache des vorhergehenden 950-°C-Versuches an. Als Ursache für diese Steigerung bieten sich folgende Teilerklärungen an:

- Das Experiment wurde mit einer höheren Gasaustrittstemperatur als 950 °C betrieben. Nach /40/ ist dies jedoch nicht mehr eindeutig festzustellen.
- Das Auftreten von Partikelbruch kann nicht völlig ausgeschlossen werden. Dies gilt für die U- und T-BE, die mit maximalen schnellen Neutronendosen von $\theta_s^{\max} = 3,5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ bzw. $2,6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ ($E \geq 0,1 \text{ MeV}$) die Dosisschwelle von $2,5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ überschritten haben, unterhalb der kein Bruch entsprechend den Studsviker R2-Kugelexperimenten auftreten sollte /11/. So treten im R2-K3-Test bei Karbidpartikeln bereits nach 11% fima und einer schnellen Neutronendosis von $3,1 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ eindeutig Schäden auf. Die Partikeln in den Tapetenelementen sind darüberhinaus noch durch die Matrixeinbettung gefährdet /45/.
- Der V13-Meßwert beruht zum Teil auf Aktivitätsschätzungen /46/, die durch die vergleichsweise starke Erhöhung der Ag-110m-Werte relativ zum Cs-137 verursacht werden.

Gibt der V13-Meßwert, trotz der Aktivitätsabschätzung, die tatsächlichen Verhältnisse wieder, so führt die Berücksichtigung der ersten beiden Punkte im Rechenmodell zu einer höheren errechneten Kühlgasaktivität und damit zu einer Vergrößerung der Faktorabweichung.

Zwei Versuche mit geringer Faktorabweichung (V11, V13) weisen gleichzeitig eine hohe Staubmasse bzw. Staubaktivität auf, so daß die gute Übereinstimmung von Rechnung und Messung durch den vergleichsweise erhöhten Aktivitätsanteil des eingesaugten Staubes verursacht worden sein kann.

Große Faktorabweichungen dagegen zeigen die Versuche V08 (825 °C), V07 (850 °C) und V12 (950 °C). Mit Abweichungen um den Faktor 4 - 6,5 für (b) und 7,5 - 15 für (a) bilden sie die untere Grenze des Ergebnisfeldes, wobei sich die Werte wiederum durch eine eindeutige Gerade verbinden lassen. Sowohl V07 als auch V08 weisen niedrige Kühlgasaktivitäten auf, die unter denen des 800-°C-Versuches liegen, jedoch bei einer Meßgenauigkeit von $\pm 100\%$ im positiven das Niveau entsprechender Versuche gleicher Gasaustrittstemperatur erreichen.

Die geringere Staubaktivität dieser Versuche, die mit Ausnahme von V08 (75%) zwischen 10 und 40% der Heißgasaktivität schwankt, weist auf einen höheren diffusiven Kühlgasaktivitätsanteil hin.

Damit zeichnen sich zwei gegenläufige Tendenzen im Verlauf der Faktorabweichung ab, die allerdings aus der Beobachtung einzelner weniger Meßpunkte resultieren:

- Die Versuche am oberen Rand des Ergebnisfeldes weisen eine geringere Faktorabweichung auf, die mit wachsender mittlerer Gasaustrittstemperatur anwächst.
- Die Versuche an der unteren Grenze zeigen größere Faktorabweichungen. Diese nehmen zu höheren Gasaustrittstemperaturen hin ab.

Beide Tendenzen lassen sich mit dem zu hohen Temperaturen hin stark anwachsenden atomaren Kühlgasaktivitätsanteil erklären.

Im ersten Fall addiert sich zu einem zwar hohen, dabei in sich jedoch schwankenden Staubaktivitätsniveau eine anwachsende atomare Aktivität. Die Substitution beider Erscheinungen schwächt die Steigung der oberen Randgeraden ab - die Faktorabweichung wächst.

Im zweiten Fall dagegen wird bei höheren Gasaustrittstemperaturen die errechnete Aktivität mit einer vorherrschend atomaren VAMPYR-Aktivität verglichen. Die untere Randgerade hat einen stärkeren Anstieg, da die Veränderung der Staubaktivität nur eine geringe Rolle spielt - die Faktorabweichung sinkt.

Diese qualitative Betrachtung stützt sich jeweils auf wenige Experimente und müßte durch weitere Versuche abgesichert werden. In der folgenden Bewertung werden die beschriebenen Tendenzen quantitativ wegen der ungenügenden Repräsentativität nicht weiter verfolgt. Statt dessen werden die gemittelten Faktorabweichungen in den einzelnen Temperaturgruppen auf ihre Temperaturabhängigkeit hin untersucht. Die Mittelung ist berechtigt, weil die einzelnen Meßergebnisse aufgrund der geringen Schwankungsbreite im allgemeinen noch innerhalb der Meßungenauigkeit liegen.

Tabelle 21 zeigt nun die in den jeweiligen Temperaturgruppen auftretenden temperaturgemittelten Faktorabweichungen sowie den Gesamtmittelwert. Die Versuche V06 und V13 werden nicht berücksichtigt.

Daten- satz Cs-137	$T_{GA} [^{\circ}C]$				mittlere Faktor- abweichung
	800 V11	825 V08/09/10	850 V04/V07	950 V12	
$D_0 = 0,2$ $Q^0 = 38000$ (b)	1,8	3,4	3,8	4,2	3,3
$D_0 = 4,43 \cdot 10^{-3}$ $Q^0 = 26000$ (a)	4,4	7,6	8,7	7,4	7,0

Tab. 21: Faktorabweichungen in den Temperaturgruppen

Für beide Datensätze nehmen die Faktorabweichungen mit wachsender mittlerer Gasaustrittstemperatur zu, wobei im Falle von (a) diese bei 950 °C leicht sinkt. Da nicht auszuschließen ist, daß in den Messungen staubgebundene Aktivitäten enthalten sind, die die Faktorabweichungen verkleinern, sollte die mittlere Faktorabweichung jedoch eher größer sein. Gilt für die gemessene Kühlgasaktivität die Temperaturabhängigkeit der Abbildung 27, so folgt aus den Zunahmen der Faktorabweichungen eine zu hohe Aktivierungsenergie beider Datensätze.

In Anbetracht der in die Vergleichswerte eingehenden Ungenauigkeiten

stimmen die Ergebnisse des Datensatzes (b) gut mit den Messungen überein und werden deshalb im folgenden hauptsächlich angeführt. Er bietet eine realistische Grundlage für Cs-137 Corefreisetzungsrechnungen. Die auf der Basis (a) errechneten Werte lassen sich dagegen lediglich als Grenze der zu erwartenden Freisetzung interpretieren und haben ausgesprochen konservativen Charakter. Sie sollen im weiteren mögliche Schwankungsbreiten verdeutlichen.

5.3.5 Die Sr-90 Kühlgasaktivität

Lagen die Caesium-Nachrechnungen über den Messungen, so gilt für Sr-90 das Gegenteil. Mit zwei Ausnahmen errechnet der Sr-90-Datensatz kleinere Kühlgasaktivitäten. Die in Tabelle 22 aufgeführten Faktorabweichungen wurden deshalb aus dem Verhältnis Messung/Rechnung gebildet.

Versuch	$T_{GA} [^{\circ}C]$	VAMPYR Sr-90 $[10^{-11} \text{ Ci/Nm}^3]$	SPAR $[10^{-11} \text{ Ci/Nm}^3]$	Faktor- abweichung
V06	770	2,39	0,067	35,7
V11	800	5,04	0,247	20,4
V08	825	1,42	0,65	2,2
V09	825	1,0	0,763	1,3
V10	825	1,73	0,661	2,6
V04	850	1,39	1,489	0,93
V07	850	0,57	1,388	0,43
V12	950	30,5	15,23	2,0
V13	950	619,7	15,71	39,45

Tab. 22: Vergleich der VAMPYR- und SPAR-Aktivitäten des Sr-90

Hier zeigen die Faktorabweichungen sehr große Schwankungen, wobei auffälligerweise entweder sehr große oder sehr kleine Abweichungen auftreten. Verursacht werden diese Schwankungen durch die bei niedrigen und hohen Gasaustrittstemperaturen auftretenden, starken Überhöhungen

der gemessenen Kühlgasaktivität. So ist z. B. die Strontium-Kühlgasaktivität des Versuches V11 (800 °C) trotz niedriger diffusiver Temperatur um das 3,6- bis 9fache höher als die der Versuche V04/V07 (850 °C). Der Versuch V11 weist dabei eine sehr hohe, V07 dagegen eine sehr niedrige Staubmasse und Kaltgasaktivität auf. Dies gilt ebenso für V13, dessen hohe Aktivität neben den oben genannten Gründen durch eine hohe Staubmasse mitbestimmt worden sein kann.

Der Versuch V12 stellt in diesem Zusammenhang insofern eine Besonderheit dar, als bei den Messungen keine abgelagerten Strontiumaktivitäten im Testrohr gefunden wurden, so daß die Gesamtaktivität vergleichsweise sehr niedrig liegt. Auch der entsprechende KF-Versuch unterscheidet sich von allen anderen Versuchen durch eine sehr niedrige Staubmasse bei gleichzeitig hoher spezifischer Kaltgasaktivität. Hier stellt sich die Frage, inwieweit die geringe Staubmasse mit der nicht meßbaren Strontium-Testrohraktivität zusammenhängt.

Berücksichtigt man in diesem Zusammenhang die im Vergleich zu den VAMPYR-Experimenten um mehr als 300% höhere Staubaktivität der KF-Versuche, so scheint der staubgebundene Strontiumtransport zumindest im tieferen Kühlgastemperaturbereich eine nicht unwesentliche Rolle für die Gesamtkühlgasaktivität zu spielen. Hieraus ließe sich teilweise die schwierige temperaturabhängige Einordnung der Meßwerte erklären.

Analog zu Cs-137 bilden die Versuche V06 (770 °C), V11 (800 °C) und bedingt V13 (950 °C) mit Faktorabweichungen von 20 - 40 den oberen Rand des möglichen Ergebnisfeldes. Wie Tabelle 19 zeigt, lag für V11 und V13 eine sehr hohe Staubmasse bzw. spezifische Staubaktivität vor; V06 weist wiederum eine sehr hohe Kühlgasaktivität auf. Die Verbindungsgerade V06 - V11 stellt somit einen möglichen oberen Grenzverlauf dar, dessen Gradient jedoch variabel ist und der durch weitere verfeinerte Experimente verifiziert werden müßte.

Die restlichen Versuche deuten den möglichen unteren Bereich an (Faktorabweichung 0,4 - 2,6), wobei alle Versuche eine verhältnismäßig geringe

Staubmasse aufweisen. V07, mit einer sehr kleinen Staubmasse und spezifischen Staubaktivität, liegt deutlich unterhalb der errechneten Strontium-Aktivität und müßte umgekehrt als Beispiel eines Versuches mit hohem diffusiven Kühlgasaktivitätsanteil anzusehen sein. Dies gilt auch für V12, dessen Besonderheiten schon genannt wurden.

Für die Begrenzung des Ergebnisfeldes zu niedrigen Kühlgasaktivitäten hin bieten sich zwei Verbindungsgeraden an:

- V12-V09 als eine mögliche untere Grenze, die sich an dem Verlauf der Rechnung orientiert;
- V12-V07 als Geradenverlauf, der den möglichen diffusiven Charakter dieser Messung im Auge behält.

Insgesamt bestätigt die Nachrechnung den Eindruck, daß auf die Berücksichtigung des Staubes beim Strontiumtransport nicht verzichtet werden kann. Für den Fall eines geringen Staubanteils ist eine gute Übereinstimmung der Messung und Rechnung festzustellen. Die Anwendung dieses Sr-90-Datensatzes für Auslegungsrechnungen führt jedoch zu optimistischen Aktivitäten.

5.3.6 Die Kühlgasaktivität der BE-Typen

Von besonderem Interesse ist die Aufteilung der Gesamtkühlgasaktivität in die jeweiligen Beiträge der beteiligten BE-Typen. In Abbildung 28 und 30 sind die absoluten Kühlgasaktivitäten und in Abbildung 29 und 31 die Kühlgasaktivitätsanteile in Summenform für Cs-137 und Sr-90 dargestellt.

Bedingt durch die hohe absolute BE-Zahl und die BE-Kontamination nimmt die Kühlgasaktivität aus den GK-BE einen überragenden Anteil ein. Im Verlauf von 2,5 Betriebsjahren (August 1971 - Januar 1974) wurden mehr als 90% der Gesamtaktivität an Cs-137 und Sr-90 aus GK-BE freigesetzt, die in diesem Zeitraum etwa 50% der gesamten Brennelemente stellten.

In diese Periode fällt als vorbereitende Beschickungsmaßnahme der geplanten Innencoreverbreiterung die Wechselbeschickung WB 80 - 83, (Juli 1972), bei der wechselseitig über jeweils zwei WB die Kanäle 3 - 5, danach die Kanäle 2 - 5 mit frischen Brennelementen beladen wurden. Als Folge mußte in der ersten Periode (WB 80/81) der zweite Kanal mit abgebrannten U- und T-BE aufgefüllt werden. Während dieses Zeitraumes lag das radiale Temperaturmaximum in den oberen Regionen des zweiten Kanals (mittl. BE-Oberflächentemperatur der drei oberen Regionen: 1028, 1049, 985 °C), so daß eine momentane verstärkte Freisetzung aus den rückgeführten, stark abgebrannten Brennelementen erfolgte (mittlerer Abbrand: 13,9 bzw. 13,2 fima). Die Rechnung zeigt in dieser Periode einen starken Freisetzungsanstieg der U- und T-BE, der die GK-Aktivität für kurze Zeit zurückdrängt.

Das breite Innencore ab WB 84 führt zu einer Stabilisierung der freigesetzten Aktivität für alle Typen. Durch die GO- und einsetzende GLE-BE-Zugabe wird der GK-Aktivitätsanteil zunächst langsam, mit Eingriff der 950-°C- bzw. 975-°C-Temperaturverteilungen deutlich verkleinert. Am Ende des Nachrechnungszeitraumes ist der GK-BE-Anteil auf etwa 45%, der Kühlgasaktivitätsanteil auf 38% (Cs-137) bzw. 43% (Sr-90) abgesunken. Der Beitrag der drei Prozent GLE-BE beträgt dagegen nun 40 - 50%.

Die Aktivitätsunterscheidung nach BE-Typen ermöglicht es weiterhin, einzelne BE-Chargen konstanter Anzahl auf ihr Freisetzungsverhalten bei Leistungs-, Temperatur- und Abbrand-Umwälzzustandsänderungen zu untersuchen. So bleibt z. B. die absolute BE-Zahl der U- und T-BE bis zum Beginn der kontinuierlichen BE-Entnahme im April 1973 konstant.

Die Leistungserhöhung auf 38 MW läßt wegen der erhöhten mittleren BE-Leistung die freigesetzte Caesium- und Strontium-Kühlgasaktivität aus beiden BE-Typen anwachsen.

Der schon beschriebene Wechsel der Beschickungsstrategie (WB 33 - Juni 1970) - gezielte BE-Rückführung - senkt die IC-Temperaturen. Die

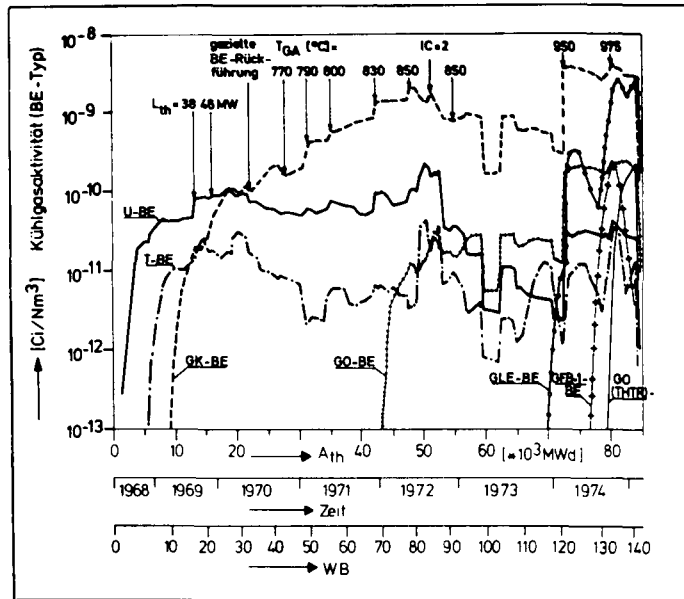


Abb. 28: Cs-137-Kühlgasaktivitätsverlauf der BE-Typen

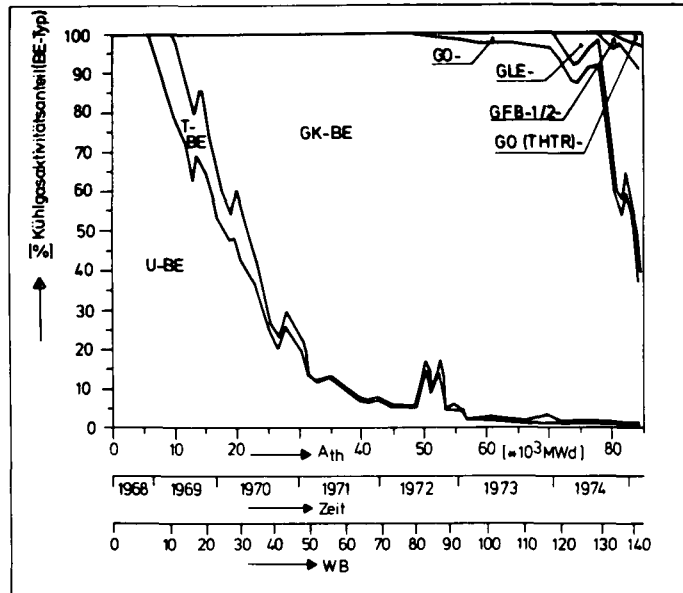


Abb. 29: Cs-137-Kühlgasaktivitätsanteil der BE-Typen

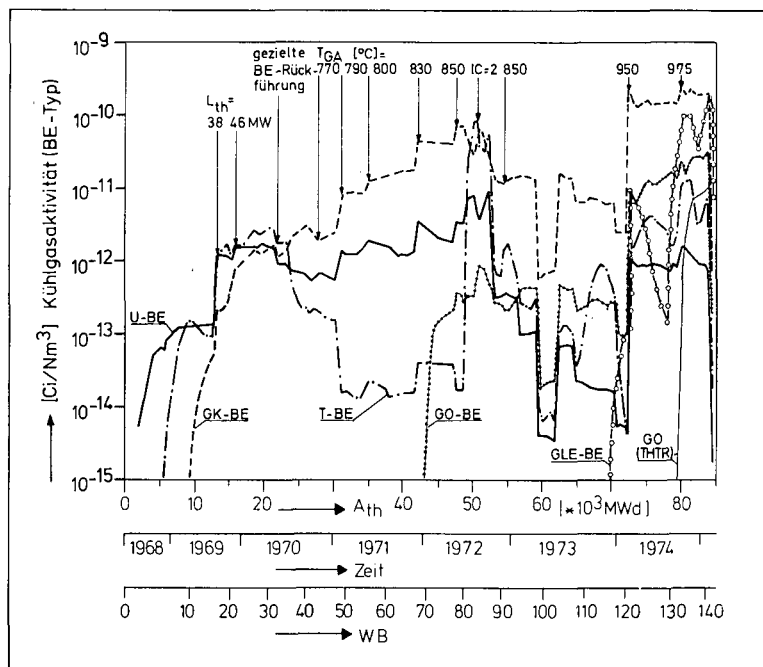


Abb. 30: Sr-90-Kühlgasaktivitätsverlauf der BE-Typen

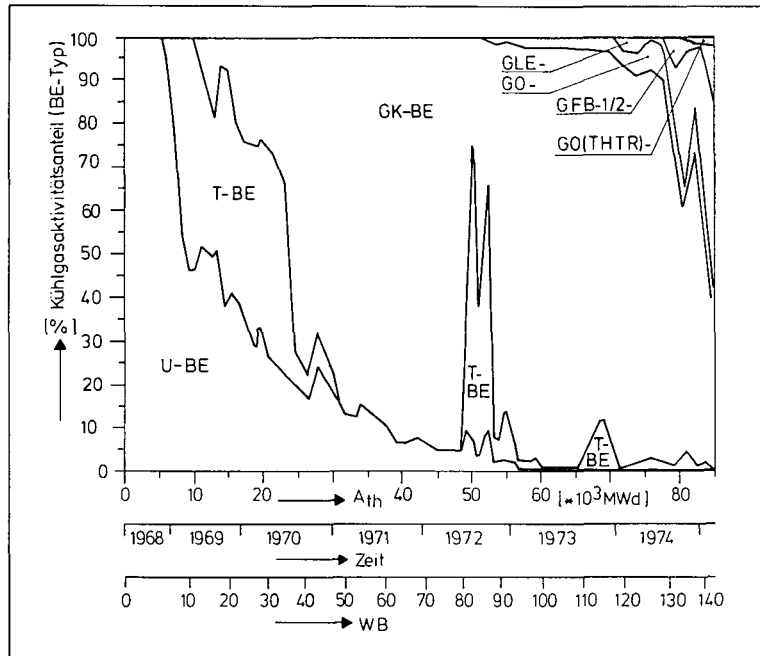


Abb. 31: Sr-90-Kühlgasaktivitätsanteil der BE-Typen

langfristige Folge dieser Änderung für die regionalen mittleren BE-Oberflächentemperaturen wird aus der Gegenüberstellung zweier aufeinanderfolgender Temperaturverteilungen (WB 41 - September 1970, $T_{GA} = 770^{\circ}\text{C}$; WB 49 - Januar 1971, $T_{GA} = 790^{\circ}\text{C}$) deutlich:

Kanal 1, Region 1 (IC):	842°C ($T_{GA} = 770^{\circ}\text{C}$)	785°C ($T_{GA} = 790^{\circ}\text{C}$)
Region 2 (IC):	813°C	751°C
Kanal 2, Region 7 (AC):	911°C	953°C
Region 8 (AC):	912°C	949°C

Im Verlauf dieser Abbrand-Umwälzzustände sind die T-BE hauptsächlich im Kanal 1 (IC), nur wenige dagegen im Kanal 4 und 5 des AC angeordnet, so daß die Freisetzung dieser Charge stark abnimmt. Ein entsprechendes Verhalten zeigen die U-BE. Hier wird jedoch die Freisetzungsreduktion aus dem ersten Kanal durch die Erhöhung aus dem AC annähernd ausgeglichen (siehe die BE-Verteilungen auf IC und AC der Abb. 21 und 22). Die wachsende Anzahl der GK-BE kann jedoch die Abnahme der Kühlgasaktivität aus den U- und T-BE in diesem Zeitraum noch nicht kompensieren, so daß die Gesamtkühlgasaktivität ebenfalls abflacht (siehe Abbildung 23 und 24).

Die nun folgenden Erhöhungen der mittleren Gasaustrittstemperatur auf 800 , 830 und 850°C lassen die Aktivität der U-BE entsprechend ihrer Verteilung auf das gesamte Core langsam ansteigen.

Demgegenüber schwankt die Kühlgasaktivität aus den T-BE entsprechend den Verschiebungen der IC-Temperaturverteilung. Die Änderung der diffusiven Temperatur des ersten Kanals macht dies deutlich.

Kanal 1 (IC) :	$T_{Kan1} = 763^{\circ}\text{C}$ (WB 56, Juni 1971, $T_{GA} = 800^{\circ}\text{C}$)
	$T_{Kan1} = 782^{\circ}\text{C}$ (WB 68, Dezember 1971, $T_{GA} = 830^{\circ}\text{C}$)
	$T_{Kan1} = 760^{\circ}\text{C}$ (WB 78, Juni 1972, $T_{GA} = 850^{\circ}\text{C}$)

Die anschließende Wechselbeschickung verstärkt die Caesium- und Strontiumaktivität beider BE-Typen erheblich.

Mit Beginn der kontinuierlichen Entnahme abgebrannter Brennelemente (WB 100) reduzieren sich beide Kühlgasaktivitätsanteile auf wenige Prozent. Die kurzfristige Zunahme der T-BE-Aktivität erklärt sich dabei aus einer erneuten Frischzugabe auf die Außencorekanäle im Intervall WB 108 - 112 (August - Oktober 1973). Die Gasaustrittstemperaturen 950 - 975 °C lassen die Aktivitäten beider Typen absolut zwar ansteigen; ihr Gesamtaktivitätsanteil liegt jedoch unter 5%.

Am Beispiel der von WB 115 bis 120 (Dezember 1973 - Januar 1974) auf das AC geladenen GLE-Typen wird der Einfluß des shuffelns auf das Freisetzungsverhalten deutlich. Ab WB 120 flacht ihre Kühlgasaktivität leicht ab, da keine GLE-BE mehr zugeführt werden, Abbildung 28 und 30. Die Temperaturerhöhung auf 950 °C hat einen Temperaturanstieg vor allem in den oberen Regionen der Kanäle 3 - 5, Abbildung 15, und damit einen entsprechenden Kühlgasaktivitätsanstieg zur Folge. Durch das vertikale Umladen wandern die GLE-BE schon nach wenigen WB in Regionen niedriger Temperatur, so daß ab WB 126 (April 1974) ihre Freisetzung abnimmt. Der ab WB 130 (September 1974) einsetzende Anstieg ist mit dem Beginn der Rückführung teilabgebrannter GLE-BE verbunden, die auf Kanal 3 nach 13 WB das Core und nach weiteren 2 WB das Kugelabzugsrohr durchlaufen haben. Da die GLE-BE über 6 WB-Intervalle frisch zugegeben wurden, ist der Vorrat rückzuführender GLE-BE aus Kanal 3 zum Zeitpunkt der WB 136 (November 1974) erschöpft, so daß über weitere 2 WB keine abgebrannten GLE-BE rückgeführt werden können. Die Folge ist ein Absinken sowohl der GLE- als auch der Gesamtkühlgasaktivität (Abb. 23 und 24), da der GLE-BE-Aktivitätsanteil während dieses Zeitraumes etwa 33 - 35% beträgt. Inzwischen haben die GLE-BE des vierten Kanals nach 22 WB jedoch das Kugelabzugsrohr erreicht, so daß ab WB 140 (Dezember 1974) die Kühlgasaktivität mit der wieder einsetzenden GLE-BE-Rückführung erneut ansteigt.

Aus dem dargestellten Aktivitätsverlauf wird deutlich, daß die Gesamtkühlgasaktivität von dem typenweisen Abbrand-Umwälzzustand und dessen zugeordnetem Freisetzungsanteil wesentlich mitbestimmt wird. Deshalb

sollten Änderungen in der Beschickungsstrategie auf ihre Konsequenzen hinsichtlich der SP-Freisetzung im voraus überprüft werden.

5.4 FR- und R/B-Werte

Neben der absoluten Aktivitätshöhe des Kühlgases kann man mit den in Gleichung (6) und (7) definierten R/B- und FR-Werten einen anschaulichen Einblick in das Freisetzungsverhalten des Gesamtcores bzw. der eingesetzten BE-Typen gewinnen. Wie in Kapitel 5.1 gezeigt wurde, kennzeichnet vor allem der integrale FR-Wert das Corefreisetzungsverhalten der beiden Nuklide. Daneben kann mit Erreichen des Quasigleichgewichtescores im April 1973 der R/B-Wert zur differentiellen Beschreibung der momentanen Freisetzung benutzt werden.

Es wird zwischen dem mittleren FR-(R/B-) Wert sowohl des Cores (\overline{FR} , $\overline{R/B}$) als auch der BE-Typen und dem maximalen FR-(R/B-) Wert unterschieden. Dabei wird derjenige mittlere FR-(R/B-) Wert der BE-Typen als Maximalwert gewählt, der je WB-Zeitschritt aus allen Abbrandklassen, BE-Typen und Coreregionen den höchsten Wert erreicht. Den FR-(R/B-) Werten wird die mittlere Kontamination des Cores bzw. die der BE-Typen gegenübergestellt, da beide auf das im BE vorhandene Uran- bzw. Spaltproduktinventar bezogene Größen sind und über die Abbrandgleichungen zusammenhängen. Für die Corekontamination wird dabei die Veränderung aufgrund der Abbrandabnahme und der Zunahme aus der Zugabe frischer BE berücksichtigt.

Liegt der mittlere FR-(R/B-) Wert unterhalb der Corekontamination, so wird die Kühlgasaktivität hauptsächlich aus der BE-Kontamination gespeist. Dieses Verhalten zeigen Cs-137 bzw. Sr-90 in Abbildung 32 und 33. Bis zum Ende des Nachrechnungszeitraumes liegen die mittleren FR-Werte und die nicht dargestellten mittleren R/B-Werte des Cores unterhalb der mittleren Corekontamination.

Dies wird quantitativ im Zeitraum des VAMPYR-Versuches V13 (950 °C), Mai 1974, durch folgende Werte wiedergegeben:

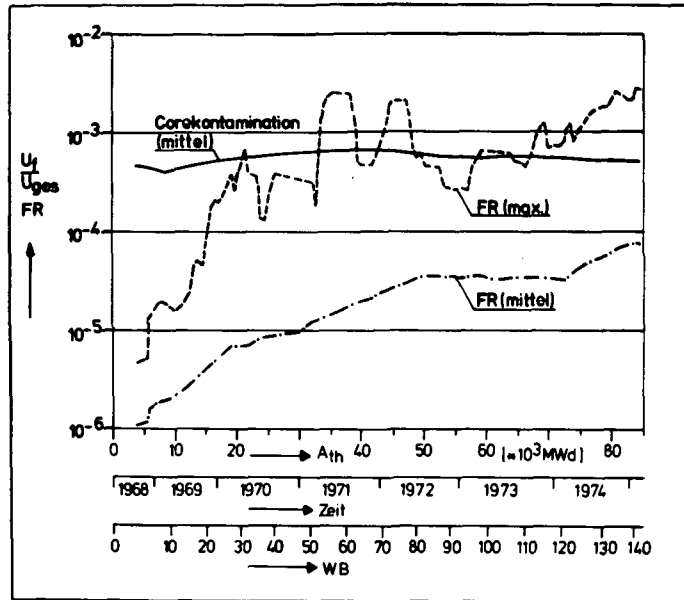


Abb. 32: Verlauf der mittleren und maximalen Cs-137-FR-Werte

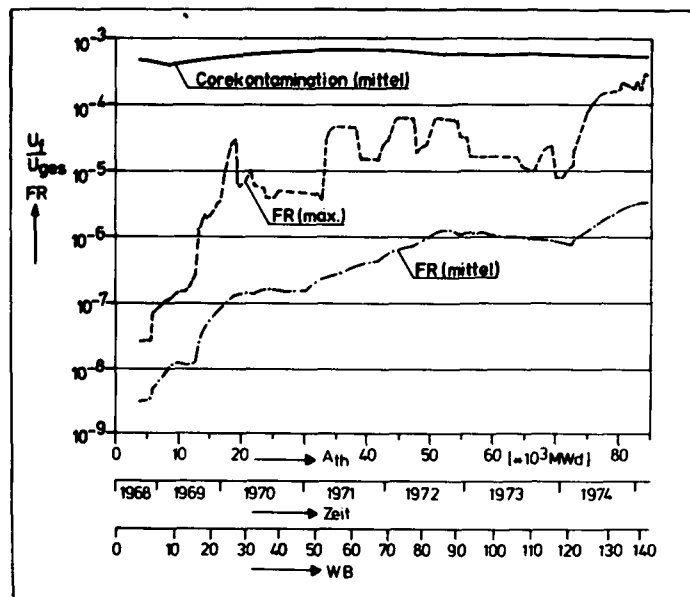


Abb. 33: Verlauf der mittleren und maximalen Sr-90-FR-Werte

$$\text{Corekontamination : } U_f/U_{\text{ges}} = 5,2 \cdot 10^{-4}$$

$$\text{Cs-137 (Core) : } \overline{R/B} = 3,4 \cdot 10^{-4}, \quad \overline{FR} = 4,7 \cdot 10^{-5}$$

$$\text{Sr-90 (Core) : } \overline{R/B} = 1,5 \cdot 10^{-5}, \quad \overline{FR} = 1,5 \cdot 10^{-6}$$

Der Verlauf der maximalen FR-bzw. R/B-Werte ist ein Kennzeichen dafür, wie weit einzelne Brennelemente über die Kontamination hinaus durch Diffusion aus dem CP oder aufgrund von Ausheizerscheinungen einen Beitrag zur Freisetzung leisten.

Im Falle des Cs-137 liegt der maximale FR-(R/B-) Wert zum Teil über der mittleren Corekontamination. Er wird bis zum Erreichen von 975 °C mittlerer Gasaustrittstemperatur allein durch das Verhalten einiger GK-BE geprägt, die sowohl die mittlere Core- als auch die typspezifische BE-Matrixkontamination überragen. Einzelne Vertreter der restlichen BE-Typen überschreiten bis zu diesem Zeitpunkt zwar im R/B-Wert während kurzer Zeitabschnitte ebenfalls ihre Matrixkontamination, ohne jedoch den entsprechenden mittleren FR-Wert darüber anzuheben.

Ein quantitatives Beispiel aus dem Zeitraum des Versuchs V13 ist für Cs-137 in Tabelle 23 festgehalten.

BE-Typ	U-BE	T-BE	GK-BE	GO-BE	GLE-BE
Typenkontamination	$4,7 \cdot 10^{-4}$	$0,7 \cdot 10^{-4}$	$9,6 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$7,0 \cdot 10^{-4}$
$\overline{R/B}$ (Typ)	$3,4 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$6,7 \cdot 10^{-4}$	$3,6 \cdot 10^{-4}$	$7,2 \cdot 10^{-5}$
R/B_{max} (Typ)	$4,0 \cdot 10^{-4}$	$5,7 \cdot 10^{-4}$	$7,2 \cdot 10^{-2}$	$2,5 \cdot 10^{-3}$	$3,1 \cdot 10^{-4}$
\overline{FR} (Typ)	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$7,4 \cdot 10^{-6}$	$8,4 \cdot 10^{-5}$	$8,6 \cdot 10^{-6}$	$5,6 \cdot 10^{-5}$
FR_{max} (Typ)	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$7,1 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-4}$	$2,4 \cdot 10^{-4}$

Tab. 23: BE-Typ-abhängige FR- und R/B-Werte für Cs-137

Danach zeigen Einzelbrennelemente des T-, GK- und GO-Typs, bedingt durch ihre Lage im Core, ein verstärktes Freisetzungsverhalten. Be-

trachtet man die entsprechend definierten FR-(R/B-) Werte der coated particles, so liegt beim CP des GK-BE der maximale R/B-Wert über der herstellungsbedingten PyC-Kontamination. Für das T- und GO-BE trifft dies jedoch nicht zu, wie die unteren Zahlenbeispiele zeigen.

$$\begin{array}{ll} \text{T-BE:} & R/B_{\max} \text{ (CP)} = 4,6 \cdot 10^{-4}, \quad \text{CP-Kont (PyC)} = 3 \cdot 10^{-3} \\ \text{GK-BE:} & R/B_{\max} \text{ (CP)} = 1,0 \cdot 10^{-2}, \quad \text{CP-Kont (PyC)} = 6 \cdot 10^{-3} \\ \text{GO-BE:} & R/B_{\max} \text{ (CP)} = 5,3 \cdot 10^{-4}, \quad \text{CP-Kont (PyC)} = 8 \cdot 10^{-4} \end{array}$$

Der Cs-137-Kühlgasaktivitätsanteil der GK-BE wird somit vereinzelt aus der CP-Diffusion versorgt.

Im Gegensatz dazu ist der hohe maximale R/B-Wert der T- und GO-BE eine Ausheizerscheinung, weil abgebrannte Brennelemente mit geringer Leistung in den heißen Corebereichen zu erhöhter Freisetzung angeregt werden.

Darüberhinaus verdeutlicht der Anstieg des mittleren R/B-Wertes des GO-Typs über die BE-Kontamination, daß in diesem Zeitraum eine erhebliche Anzahl GO-BE, jedoch nur wenige T-BE, der Ausheizung unterliegen.

Mit Einsatz der Temperaturverteilung für 975 °C durchbricht die Caesium-Diffusionsfront die Partikelbeschichtung für eine Mehrzahl der GLE- und für wenige GFB-(BISO-)Brennelemente, so daß der mittlere R/B-Wert der GLE- und der maximale FR-(R/B-)Wert der GFB-BE die herstellungsbedingte BE-Kontamination übersteigen.

Für den Zeitraum Dezember 1974, V14, errechnen sich folgende Werte:

$$\begin{array}{ll} \text{GLE-BE:} & \overline{R/B} = 1,3 \cdot 10^{-3}, \quad \overline{FR} = 2,3 \cdot 10^{-4} \\ \text{GFB-BE:} & R/B_{\max} = 5,4 \cdot 10^{-4}, \quad FR_{\max} = 2,8 \cdot 10^{-4} \end{array}$$

Im Falle des Sr-90 liegt, bedingt durch die schlechte Matrixdiffusion, der maximale FR-Wert noch unter der Corekontamination. Mit Erreichen von 950 °C Gasaustrittstemperatur überschreiten einige GK-BE, bei 975 °C U-, GO- und GLE-BE, lokal mit ihrem maximalen R/B-Wert die ei-

gene BE-Kontamination.

Im Zeitraum von V13 ergeben sich für die GK-BE folgende Werte:

$$\begin{aligned} \text{GK-BE:} \quad \overline{R/B} &= 2,9 \cdot 10^{-5}, & \overline{FR} &= 2,4 \cdot 10^{-6} \\ R/B_{\max} &= 4,6 \cdot 10^{-3}, & FR_{\max} &= 1,1 \cdot 10^{-4} \end{aligned}$$

Mit Hilfe der FR-(R/B-) Werte kann auch das Freisetzungsverhalten der U- und T-BE während der in Kapitel 5.3.1 beschriebenen Wechselbeschickung näher gekennzeichnet werden.

Ursache für die Caesium- und Strontiumfreisetzung sind lokale Ausheizeffekte, an denen wenige U-, aber eine erhöhte Anzahl T-BE beteiligt sind. Ein Durchbruch der Caesium-Diffusionsfront durch das CP ist nicht erfolgt. Wie Tabelle 24 zeigt, liegen in dieser Periode alle FR-Werte unterhalb, die maximalen R/B-Werte beider Typen sowie der mittlere R/B-Wert der Tapetenvariante oberhalb ihrer typspezifischen BE-Kontamination.

Nuklid	Cs-137		Sr-90	
BE-Typ	U-BE	T-BE	U-BE	T-BE
$\overline{R/B}$ (Typ)	$7,5 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-4}$	$2,3 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-4}$
R/B_{\max} (Typ)	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$
\overline{FR} (Typ)	$9,2 \cdot 10^{-6}$	$7,7 \cdot 10^{-6}$	$2,4 \cdot 10^{-7}$	$5,8 \cdot 10^{-6}$
FR_{\max} (Typ)	$3,2 \cdot 10^{-5}$	$4,2 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-6}$	$6,2 \cdot 10^{-5}$

Tab. 24: FR- und R/B-Werte in der Zeit der Wechselbeschickung

Nach Erreichen des Gleichgewichtscores (siehe Kapitel 5.1) zeigen die mittleren FR-Werte ebenfalls ein Gleichgewicht-Freisetzungsverhalten, das erst mit der Temperaturerhöhung auf 950 °C verändert wird. Hier wirkt der kontinuierliche Abzug stark abgebrannter Brennelemente

dämpfend auf die integrierte Freisetzungsrates.

Zusammenfassend läßt sich aus den Verläufen ablesen, daß

- die BE-Kontamination die Hauptquelle der Kühlgasaktivität darstellt;
- lokale Ausheizeffekte die Freisetzung einzelner BE-Gruppen stark anheben;
- bei einigen GK-BE auch die Caesium-Diffusion aus dem CP eine Rolle spielt.

5.5 Die Freisetzungsrates und die akkumulierte Aktivität

Die Freisetzungsrates und die spezifische Kühlgasaktivität sind nach Kapitel 3.3.1, Gleichung (10) über die durchgesetzte Gasmenge und die Länge des WB-Zeitschrittes miteinander verbunden, so daß deren zeitliche Verläufe einander ähnlich sind. Die Freisetzungsrates ist jedoch im Gegensatz zur bisherigen Darstellung ein häufig benutztes Mittel, um das Freisetzungsverhalten des Reaktorcores zu beschreiben. In Tabelle 25 wurden deshalb den mittleren Gasaustrittstemperaturen 770, 850, 950 °C sowie 975 °C die entsprechenden Freisetzungsrates \dot{R} für eine thermische Leistung von 46 MW zugeordnet. Es handelt sich hierbei um Mittelwerte, die aus Abbrand-Umwälzzuständen gleicher Gasaustrittstemperatur, aber unterschiedlicher diffusiver Temperatur gebildet wurden.

Das Core hat einen mittleren Abbrand von etwa 10% fima und eine mittlere schnelle Dosis von ungefähr $1 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ erreicht. Die mittlere Corekontamination liegt bei etwa $5 \cdot 10^{-4}$. Die geklammerten Werte sind Ergebnisse der SPAR-Rechnung mit dem Cs-137-Datensatz (a). Die Spalte "Abweichung" (Abw.) gibt eine Vorstellung von der mittleren Schwankungsbreite der Freisetzungsrates; dabei ist die verhältnismäßig große Abweichung für $T_{GA} = 850 \text{ °C}$ eine Folge der Veränderung der Freisetzungsrates vor und nach der Innencoreverbreiterung.

T_{GA} [°C]	Cs-137		Sr-90	
	\dot{R} [Ci/s]	Abw. [%]	\dot{R} [Ci/s]	Abw. [%]
770	$1,7 \cdot 10^{-8}$ ($4,7 \cdot 10^{-8}$)	± 4	$6,6 \cdot 10^{-11}$	± 10
850	$9,5 \cdot 10^{-8}$ ($2,1 \cdot 10^{-7}$)	± 40	$2,3 \cdot 10^{-9}$	± 95
950	$2,9 \cdot 10^{-7}$ ($5,6 \cdot 10^{-7}$)	± 10	$1,4 \cdot 10^{-8}$	± 29
975	$4,3 \cdot 10^{-7}$ ($7,4 \cdot 10^{-7}$)	± 5	$2,5 \cdot 10^{-8}$	± 14

Tab. 25: Temperaturabhängige Freisetzungsraten für Cs-137 und Sr-90

Aus dem Vergleich der Werte von 950 °C und 975 °C läßt sich eine Aussage über den Einfluß der mit etwa 2,5% Ungenauigkeit bestimmbaren Gasaustrittstemperatur auf die Freisetzungsraten bzw. Kühlgasaktivität machen. Es errechnet sich eine Erhöhung etwa um den Faktor 2, wenn die Möglichkeit des CP-Bruches ausgeschlossen wird. Für die VAMPYR-Versuche ergibt sich daraus, daß zumindest für $T_{GA} = 950$ °C Meßwertschwankungen bis 100% auf eine nicht exakt eingestellte Gasaustrittstemperatur zurückgeführt werden können.

Um eine Vorstellung über den Aufbau der Abbrand-Umwälzzustände im Verlauf der entsprechenden Gasaustrittstemperaturen zu geben, werden in der folgenden Tabelle 26 die im Core vorhandenen Partikelkonzepte (Kapitel 3.1.5.2) zur Beschreibung des Coreaufbaues verwendet.

Danach besteht das Core zu 95% aus Brennelementen mit HTI-BISO-Mischpartikeln und nur zu 5% aus BE mit LTI-Partikeln. Betrachtet man dagegen die jeweiligen mittleren Freisetzungsraten der Tabelle 27, so verschiebt sich das Bild. Entsprechend den schlechten Diffusionseigenschaften der LTI-PyC-Schicht nimmt deren Freisetzungsraten ab 950 °C Gasaustrittstemperatur stark zu. Die Mittelwerte der Tabelle 27 sind für beide Nuklide gültig, da sich die Freisetzungsraten während dieser Abbrand-Umwälzzustände nicht wesentlich unterscheiden.

T _{GA} °C	BE-Anteile (Partikelkonzept) [%]			
	HTI-BISO karb. Misch-	HTI-BISO oxid. Misch-	LTI-BISO oxid. Abbr./Brut-	LTI-TRISO oxid. Abbr.-Part.
770	79	21	/	/
850	82	18	/	/
950	68	27	3	2
975	62	33	3	2

Tab. 26: Anteil der Partikelkonzepte am Coreaufbau

T _{GA} °C	Freisetzungsanteile (Partikelkonzept) [%]			
	HTI-BISO karb. Misch-	HTI-BISO oxid. Misch-	LTI-BISO oxid. Abbr./Brut-	LTI-TRISO oxid. Abbr.-Part.
770	97	3	/	/
850	98	2	/	/
950	87	6	7	/
975	60	7	33	/

Tab. 27: Freisetzungsanteile aus den verschiedenen Partikelkonzepten

In den beiden Abbildungen 34 und 35 wird abschließend für Cs-137 und Sr-90 die über den gesamten Nachrechnungszeitraum akkumuliert freigesetzte Aktivität dargestellt. Die Verläufe zeigen erneut, daß mit gezielten Coreumstrukturierungen die Spaltproduktfreisetzung mittel- bis langfristig verringert werden kann. Die Anhebung der mittleren Gasaustrittstemperatur auf 950 °C in WB 123 (Februar 1974) verdoppelt (Cs-137) bzw. verdreifacht (Sr-90) die akkumulierte Aktivität innerhalb eines Betriebsjahres bis zur WB 143 (März 1975).

Während der sieben Nachrechnungsjahre wurden insgesamt etwa 14 (29) Ci Cs-137 und 0,6 Ci Sr-90 freigesetzt. Wegen der nicht berücksichtigten Staubaktivität ist dieser Wert für Sr-90 jedoch optimistisch und müßte real höher sein.

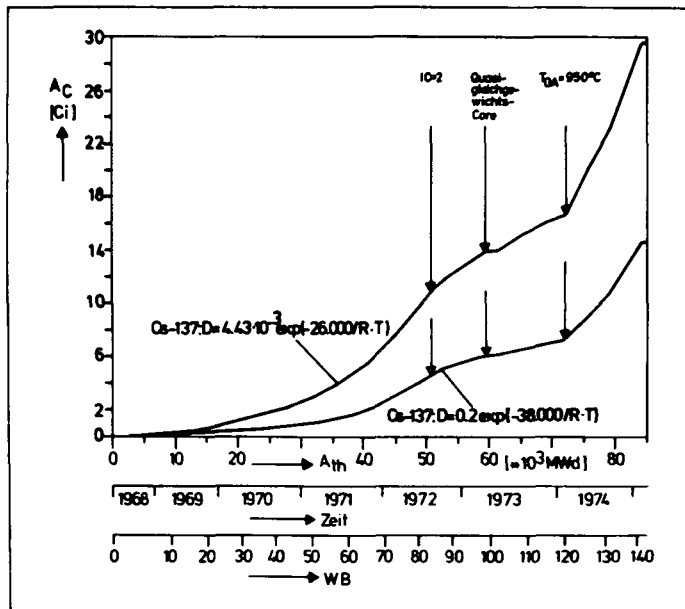


Abb. 34: Verlauf der akkumulierten Cs-137-Aktivität

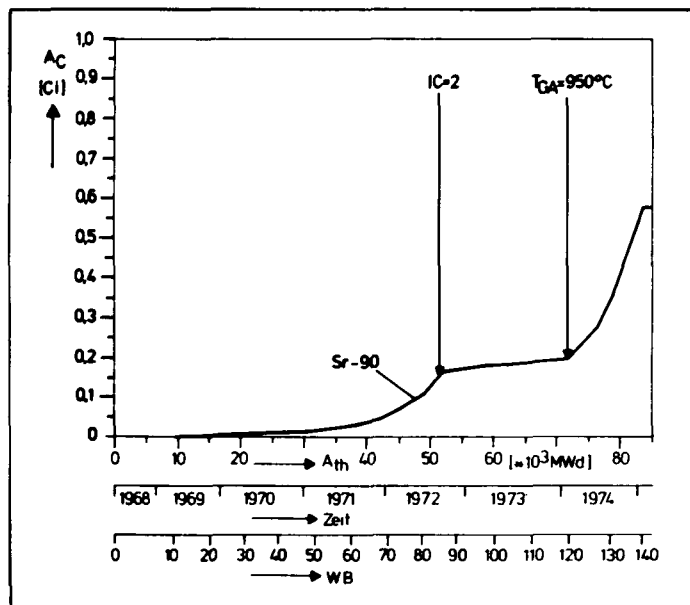


Abb. 35: Verlauf der akkumulierten Sr-90-Aktivität

5.6 Die räumliche Freisetzungsverteilung

In den vorausgegangenen Kapiteln wurde bei der Beurteilung der Kühlgasaktivität wiederholt auf die Bedeutung der räumlichen Freisetzung hingewiesen.

In Abbildung 36 und 37 sind die absoluten Cs-137-IC- und AC-Kühlgasaktivitäten sowie die anteiligen Sr-90-IC-, AC-Aktivitätsbeiträge abgebildet. Bis zur WB 84 ist der Begriff IC mit dem Kanal 1 identisch, anschließend umfaßt IC die Kanäle 1 und 2.

Sehr deutlich zeigt sich, ohne darauf nochmals näher einzugehen, der Einfluß der Beschickungsstrategien auf das Freisetzungsverhalten. Die anfänglich hohe IC-Leistungsdichte in Verbindung mit der Rückführung abgebrannter Brennelemente auf das IC (siehe Kapitel 3.4) verursachen als Folge der Leistungsanhebung auf 38 MW einen sehr starken Freisetzungsanstieg. Das AC wird davon gar nicht (Cs-137) bzw. weniger stark (Sr-90) betroffen. Der IC-Aktivitätsanteil liegt in diesem Zeitraum bei 35% (Cs-137) bzw. 20% (Sr-90). Die sich anschließende gezielte BE-Rückführung reduziert die IC-Freisetzung trotz steigender Gasaustrittstemperaturen auf ein Minimum von wenigen Prozent (siehe Kapitel 5.3.6). Mit der Wechselbeschickung (siehe Kapitel 5.3.6 und 5.4) steigt dieser Anteil kurzfristig auf 75% (Cs-137) bzw. 95% (Sr-90) an; als Folge des breiten Innencores und trotz 950 °C bzw. 975 °C Gasaustrittstemperatur sinkt der IC-Anteil jedoch wiederum stark ab. Für den Versuchszeitraum der VAMPYR-Experimente V04 - V13 liegt der Kühlgasaktivitätsanteil des IC im zeitlichen Mittel bei etwa 10% (Cs-137) bzw. 5% (Sr-90), der des AC entsprechend bei etwa 90% bzw. 95%.

Eine feinere Unterscheidung der Freisetzungsteile entsprechend den einzelnen Kanälen des Rechenmodelles zeigt Tabelle 28.

Es liegt nun nahe, die Cs-137-Kühlgasaktivität der äußeren Kanäle den Meßergebnissen gegenüberzustellen. Die Strontiumaktivität ist hierzu wegen der genannten Staubeinflüsse und des ungenauen Datensatzes nicht geeignet.

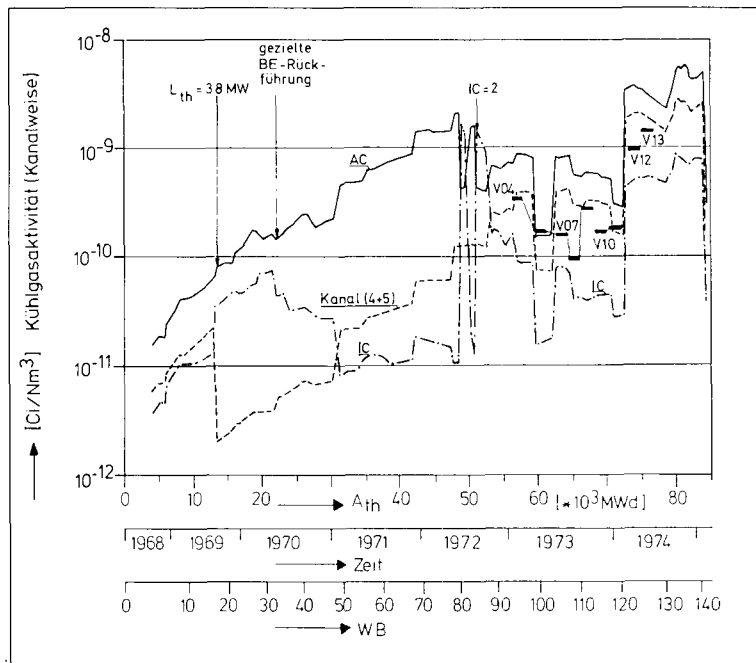


Abb. 36: Verlauf der Cs-137-IC-,AC-Kühlgasaktivität

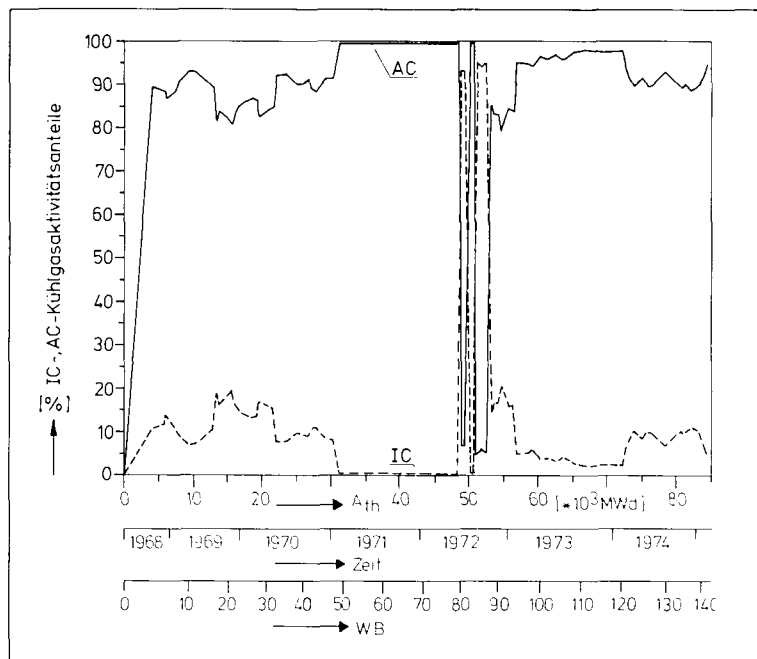


Abb. 37: Verlauf der Sr-90-IC-,AC-Kühlgasaktivitätsanteile

	Cs-137	Sr-90
Kanal 1	2%	0,2%
Kanal 2 (IC)	8%	4,1%
Kanal 3	43%	64,8%
Kanal 4	31%	23,2%
Kanal 5 (AC)	16%	7,7%

Tab. 28: Freisetzungsanteile der Kanäle

Vergleicht man die Lage der Kanalgrenzen unter Berücksichtigung ihrer Verschiebung durch die Kühlgasschlitzte des Deckenreflektors /47/ mit der Lage des VAMPYR-Ansaugrohres, so sieht man in Abbildung 38, daß dessen Ansaugöffnung etwa auf der Grenze Kanal 4 zu Kanal 5 des Rechenmodells liegt.

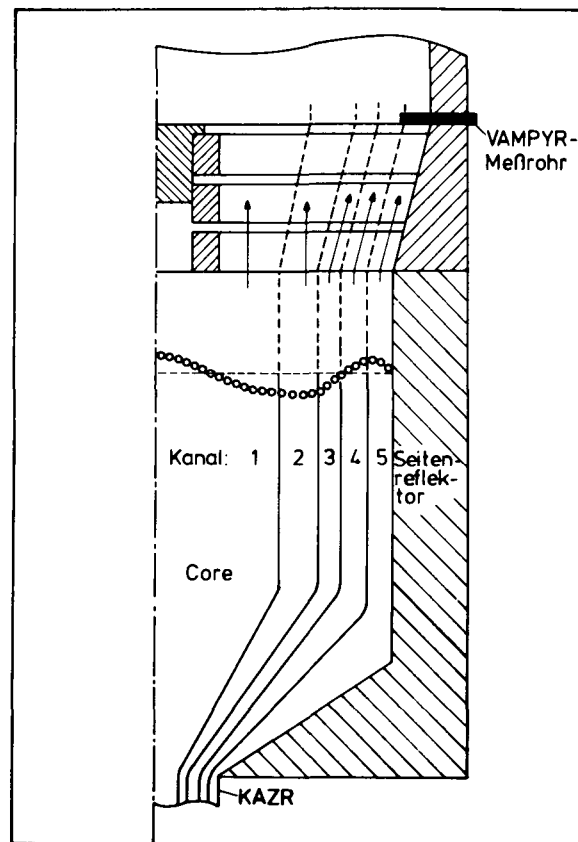


Abb. 38: Lage des VAMPYR-Meßrohres im Rechenmodell

Die geometrische Lage des VAMPYR-Meßrohres bezüglich der Kanaleinteilung im Rechenmodell ist jedoch nur eine notwendige Bedingung für eine sinnvolle Gegenüberstellung. Als hinreichend hingegen muß gelten, daß das radiale Temperatur- und Strömungsprofil des aufsteigenden Kühlgasstromes weitgehend heterogen ist. In Kapitel 4.1.2 wurde auf Temperaturmessungen am AVR hingewiesen, die derartige Temperaturprofile zeigen. Entsprechende Strömungsprofilmessungen konnten hingegen nicht durchgeführt werden, so daß die folgende Tabelle 29 von daher nur einen qualitativen Anhalt geben kann. Da mit den zugrunde gelegten Temperaturverteilungen zwischen 50% (Kanal 4 + 5) bis 90% (AC) der Cs-137-Kühlgasaktivität aus den äußeren Corebereichen freigesetzt werden, ist der IC-Beitrag nur gering und die Frage der Durchmischung von untergeordneter Bedeutung.

VAMPYR-Experiment	$T_{GA} [^{\circ}C]$	spez. Kühlgasaktivität $[10^{-9} \text{ Ci/Nm}^3]$			
		VAMPYR-Messung	SPAR Kanal 5	SPAR (4 + 5)	SPAR AC
V06	770	0,166	0,024	0,074	0,153
V11	800	0,182	0,060	0,166	0,291
V08	825	0,094	0,093	0,290	0,550
V09	825	0,273	0,113	0,322	0,582
V10	825	0,165	0,103	0,292	0,521
V04	850	0,327	0,118	0,392	0,859
V07	850	0,156	0,134	0,404	0,810
V12	950	0,940	0,733	2,039	3,477
V13	950	1,398	0,629	1,640	2,750

Tab. 29: Gegenüberstellung der Cs-137-VAMPYR- und SPAR-Kühlgasaktivitäten der äußeren Corebereiche

Mit Ausnahme von V06 und V11 liegen alle Messungen zwischen den Kühlgasaktivitäten des Kanals 5 und (4+5), was - einen repräsentativen Datensatz vorausgesetzt - auf ein örtliches Phänomen hinweisen würde. Darüberhinaus werden die Schwankungen in den Messungen der drei 825-°C-

Versuche V08, V09 und V10 von dem Rechenprogramm mit den Kühlgasaktivitäten der Kanäle 5 und (4+5) in kleinerem Ausmaß nachvollzogen, so daß für V09 die relativ höchste, für V10 die zweithöchste und für V08 die niedrigste Aktivität errechnet wird. Alle drei Versuche weisen eine verhältnismäßig gleichmäßige Staubaktivität auf.

Die Stufung des Freisetzungsverlaufs wird durch einen entsprechenden Verlauf der mittleren diffusiven Kanaltemperaturen bestätigt, wie folgende Werte zeigen:

	<u>V08</u>	<u>V09</u>	<u>V10</u>	
Kanal 5 :	789	799	796	°C
Kanal (4+5):	819	827	824	°C
AC :	843	849	846	°C

Ursache dieser Schwankungen sind kurzfristige Veränderungen im Abbrand-Umwälzzustand, die z. B. durch Verschiebungen des AC-Anteils rückgeführter abgebrannter BE verursacht werden können.

Bei den zwei 850-°C- bzw. 950-°C-Versuchen lassen sich entsprechende Analogien nicht feststellen, was möglicherweise auf den Staubeinfluß zurückzuführen ist.

Es zeigt sich, daß ein lokaler Freisetzungseffekt zwar den Ergebnissen der Rechnung nach möglich, jedoch nicht schlüssig zu beweisen ist.

5.7 Die Bedeutung der SPAR-Rechnung für Freisetzungsstudien

Mit den Resultaten der SPAR-Freisetzungsrechnung können nun die Ergebnisse bereits durchgeführter bzw. künftiger Konzeptstudien zum HTR-Freisetzungsverhalten verlässlicher beurteilt werden.

Zu diesem Zweck werden die temperaturabhängigen Freisetzungsraten der Tabelle 25 auf ein Vollastjahr und eine thermische Leistung von 3000 MW extrapoliert und den Ergebnissen eines Konzeptvergleichs /48/ für verschiedene HTR-Varianten (HTR-K, HHT, PNP) gegenübergestellt.

Für den Konzeptvergleich wurde als Referenzbrennelement das THTR-BE

mit oxidischem HTI-BISO-Mischpartikel gewählt, das in ähnlicher Auslegung im AVR eingesetzt wurde. Der Zielabbrand liegt bei 10% fima, die schnelle Dosis bei $4,5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$. Die Kontamination der BE wurde auf $2,5 \cdot 10^{-4}$ festgelegt; in den aufgeführten Ergebnissen ist kein bestrahlungsbedingter CP-Bruch enthalten. Diese Werte entsprechen somit näherungsweise dem für Tabelle 25 zugrunde gelegten Abbrand-Umwälzzustand.

Wegen des unterschiedlichen Beschickungskonzeptes – Mehrfachdurchlauf und OTTO-Prinzip – sind die für das Freisetungsverhalten wichtigen Einflußgrößen der Leistungs- und Temperaturverteilung nicht vergleichbar. Dennoch unterscheiden sich nach Tabelle 30 die extrapolierten SPAR-Ergebnisse des Cs-137-Datensatzes (a) nicht wesentlich von denen des Konzeptvergleiches, die ebenfalls mit (a) ermittelt wurden.

T_{GA} [°C]	Corefreisetzung 3000 MW _{th} [Ci/a]			
	SPAR		HTR-Studie	
	(b)	(a)	(a)	Version
770	35	97	91	HTR-K
850	195	432	600	HHT
950	596	1152	1090	PNP

Tab. 30: Cs-137-Corefreisetzung aus einem 3000-MW_{th}-Kugelhaufenreaktor

Nach Kapitel 5.3.4 ist dieser Datensatz jedoch äußerst konservativ, so daß die ebenfalls angeführten Corefreisetzungen des Datensatzes (b) realistischer sind.

Die Gegenüberstellung der Sr-90-Corefreisetzungen ist weniger eindeutig, auch wenn die Ergebnisse der Tabelle 31 eine zufriedenstellende Ähnlichkeit zeigen. Sowohl die VAMPYR-Messungen als auch die SPAR-Rechnungen lassen eine Corefreisetzung $<1 \text{ Ci/a}$ bei 770 °C Gasaustrittstemperatur erwarten. Eine Freisetzung kleiner 4 Ci/a für 850 °C erscheint dagegen zu klein und könnte entsprechend dem Staubanfall ebenso um einen Faktor 2 ansteigen.

Der Grad des Staubanfalls in einem OTTO-Kreislauf ist jedoch schwer

vorhersehbar, da einerseits das Umwälzen des Kugelhaufens entfällt und das Fehlen des "Pellkartoffeleffektes" die Staubmenge stark vermindert. Andererseits bewirkt das Einfahren der Stäbe in den Kugelhaufen einen erhöhten Staubabrieb.

T_{GA} °C	Corefreisetzung 3000 MW _{th} [Ci/a]	
	SPAR	HTR-Studie
770	0,14	1
850	4,7	4

Tab. 31: Sr-90-Corefreisetzung aus einem 3000-MW_{th}-Kugelhaufenreaktor

Aus dem Vergleich ergibt sich, daß

- die Konzeptstudien sehr konservative Caesium-Freisetzungen angeben,
- die Strontium-Freisetzungsrechnungen dessen Aktivität unterschätzen.

6 ZUSAMMENFASSUNG

Die am AVR über längere Betriebszeiten mit dem VAMPYR-Loop gemessenen Corefreisetzungen fester Spaltprodukte legen den Vergleich mit Resultaten einer realistischen Modellrechnung nahe.

Das zu diesem Zweck erstellte Spaltproduktfreisetzungsprogramm SPAR errechnet für die speziellen Randbedingungen eines Mehrfachdurchlauf-Kugelhaufenreaktors (AVR, THTR-300) die Caesium- und Strontium-Corefreisetzung unter Beachtung der tatsächlich gefahrenen Betriebsbedingungen. Es bietet sich damit erstmals die Möglichkeit, ein bisher allein an Bestrahlungsexperimenten erprobtes Rechenmodell sowie die entsprechenden Spaltprodukt-Transportdaten auf ihre Anwendbarkeit bei der Erfassung des betrieblichen HTR-Freisetzungsverhaltens zu überprüfen.

Der Einsatzbereich des Programmes umfaßt sowohl die betriebsbegleitende Nachrechnung als auch die kontrollierende Vorausberechnung der Spaltproduktfreisetzung im Normalbetrieb. Darüberhinaus sind Freisetzungsabschätzungen im Störfall möglich.

Die Güte des Rechenmodells ist hauptsächlich aus dem Gleichlauf der Verläufe von Modell- und Meßkurve abzulesen. Die Qualität der Datensätze, welche vor allem in Hinblick auf die Extrapolation für große HTR-Anlagen interessiert, ergibt sich aus dem Vergleich der absoluten Werte.

Die Rechnungen für Cs-137 wurden mit zwei Datensätzen durchgeführt. Mit deren Ergebnissen konnte sowohl der temperaturabhängige als auch der betriebszeitliche Verlauf der Meßkurve verifiziert werden, so daß die Richtigkeit des Rechenmodells bestätigt wurde. Aus dem Gleichlauf ergibt sich weiterhin, daß die Caesiumaktivität hauptsächlich diffusiven Charakter hat und die staubgebundenen Aktivitäten nur eine untergeordnete Rolle spielen.

In ihren absoluten Werten lag der auch bei Konzeptstudien verwendete Datensatz im Mittel um einen Faktor 7 über den Meßwerten, während der

zweite Datensatz mit einem mittleren Verhältnis Rechnung/Messung von etwa 4 eine realistische Grundlage für Cs-137-Freisetzungsrechnungen darstellt. Daraus folgt, daß die bisher in Konzeptstudien angegebenen Cs-137-Aktivitäten um einen Faktor 2 zu hoch liegen.

Im Gegensatz dazu deuten die Sr-90-Messungen auf einen starken Einfluß des Staubes beim Strontiumtransport hin. Dies läßt sich unter anderem aus dem weniger eindeutigen Gleichlauf zwischen Rechnung und Messung ablesen.

In der Regel liegen die errechneten Sr-90-Aktivitäten unter denen der Messungen. Nur in zwei Versuchen mit relativ geringen Staubaktivitäten, d.h. einem hohen atomaren Kühlgasaktivitätsanteil, lagen die errechneten Aktivitäten knapp über den Meßwerten. Die Nachrechnung bestätigt den Eindruck, daß auf die Erfassung des Strontiumtransportes durch Staub nicht verzichtet werden kann. Für die Fälle eines geringen Staubanteils ist eine gute Übereinstimmung festzustellen.

Die wenigen mit diesem Strontium-Datensatz bisher durchgeführten Freisetzungsrechnungen für große HTR-Anlagen geben somit die untere Grenze der zu erwartenden Strontiumaktivität an.

Die Zusammensetzung und Struktur des jeweiligen Abbrand-Umwälzzustandes haben einen entscheidenden Einfluß auf die absolute Höhe der freigesetzten Coreaktivität. Für künftige Leistungsreaktoren mit Mehrfachdurchlaufbeschickung sollte deshalb die Beschickungsstrategie auch unter dem Gesichtspunkt der Spaltproduktfreisetzung optimiert werden. Zur Entwicklung derartiger Beschickungsstrategien könnten sich Rechenprogramme der in dieser Arbeit vorgestellten Art als ein sehr wertvolles Hilfsmittel erweisen.

7 LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ Cautius, W.:
Der heutige Entwicklungsstand des Kugelhaufenreaktors.
VGB Kraftwerkstechnik 56, Heft 5, Mai 1976
- /2/ Wagemann, R.:
Reaktorphysikalische Beschreibung der Einlaufphase des AVR
durch das Rechenmodell AVR-70.
Reaktortagung, Bonn, 1971, Tagungsbericht S. 190
- /3/ Uhlenbusch, L.:
Anwendung von Zwei-Phasen-Diffusion zur Beschreibung der
Freisetzung von Caesium aus kugelförmigen Brennelementen.
Diss. TH-Aachen, 1976; KFA-Report Jül-1323, Juli 1976
- /4/ Wagemann, R. et al.:
Das Langzeitverhalten des AVR-Cores.
Atomenergie (ATKE) Bd. 25, S. 115 ff, 1975
- /5/ Wagemann, R.:
Aufbau und Auslegung eines numerischen Simulationsverfahrens
für Kugelhaufenreaktoren mit mehrfachem Kugeldurchlauf am
Beispiel des AVR.
Diss. TH-Aachen, 1973
- /6/ Liu, Yosen:
Zur Behandlung der Spaltprodukte in Abbrandrechnungen unter
Berücksichtigung neuer nuklearer Daten, angewandt auf Graphit-
reaktoren.
Jül-678-RG, Juli 1970
- /7/ Mandel, H.:
Einführung in die Reaktortheorie, Teil 2
Vorlesung an der TH-Aachen, 1968/69
- /8/ Neef, N.; Röhrig, H. D.:
Die Freisetzung von Cs-137 aus beschichteten Brennstoffteil-
chen bei Bestrahlung und beim Durchlauf durch einen 1000-MW_e-
OTTO-Reaktor. Rechnungen mit dem Diffusionsprogramm SLIPPER.
KFA-Interner Bericht, KFA-IRE-IB-29/73, Oktober 1973
- /9/ Teuchert, E. et al.:
OTTO-Kugelhaufenreaktor für eine 1000-MW_e-Heliumturbinenanlage.
Jül-1070-RG, Mai 1974

- /10/ Weber, J.:
Berechnung der Spaltproduktfreisetzung am Beispiel des AVR.
AVR-Interne Notiz, 7.4.1976
- /11/ Will, M.:
persönliche Mitteilung, 1976
- /12/ Wimmers, M.:
Das Verhalten kugelförmiger HTR-Brennelemente bei der
Massenerprobung im AVR-Reaktor.
Diss. TH-Aachen, 1977
- /13/ Hoven, H.; Ragoß, H.; Wimmers, M.:
Charakterisierung gepreßter AVR-Brennelemente. Metallo-
graphie unbestrahlter Kugeln.
KFA-Interner Bericht, KFA-IRW-IB-22, 74; August 1974
- /14/ Hick, H.; Lemmer, M.; York, J.:
The Establishment of Complete Fission Products Inventories
for Irradiated Fuel Elements.
D.P.-Report 754
- /15/ Fission Product Nuclear Data, Vol. 1.
Tagungsbericht IAEA 1974, S. 328 ff; Bologna, Nov. 1973
- /16/ Reiswig, R. D.:
Journ. of the American Ceramic Society, Vol. 44, Nr. 1, 1961
- /17/ Binkele, L.:
Ein Verfahren zur Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit von
neutronenbestrahlten Graphiten bei Temperaturen zwischen
50 und 1000 °C.
Jül-1096-RW, August 1974
- /18/ Herzing, R.:
KFA-Technische Notiz, SPT/26/1977; 4. April 1977
- /19/ Zoller, P.:
Das Transportverhalten der Spaltprodukte Caesium und Stron-
tium in beschichteten Brennstoffteilchen für Hochtemperatur-
reaktoren unter Bestrahlungsbedingungen.
Diss. TH-Aachen, 1976; KFA-Report Jül-1324, Juli 1974
- /20/ Wagemann, R.:
private Aufzeichnung

- /21/ McElmury, S. S.; Stansfield, O. M.:
An Analysis of the Effect of Buffer-IPyC Coating Separation
on the Temperature Distribution in TRISO UC₂ Fuel Particles.
GA-A-13500, Dez. 1975
- /22/ Wagemann, R. et al.:
Zusammenstellung der Reaktorphysikalischen Daten des AVR-Atom-
versuchskraftwerks für das Jahr 1969, 1970.
AVR-T1, Jülich, Januar 1971
- /23/ Wagemann, R.:
Temperaturrechnung mit temperaturabhängiger Wärmeleitfähig-
keit im Brennelement.
AVR-Interne Notiz, 21.1.1975
- /24/ Wallura, E.:
Über die Kontamination im Pyrokohlenstoff bei der Herstellung
beschichteter oxidischer Kernbrennstoffteilchen.
Diss. TH-Aachen, 1973; KFA-Report Jül-989-RW, August 1973
- /25/ Müller, A.:
Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte (Kr, Xe, J) aus Brenn-
elementen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren.
Diss. TH-Aachen, 1976; KFA-Report Jül-1295, Mai 1976
- /26/ Herzing, R.:
Auswirkung des Experiments R2-K3 bezüglich Sr-90.
KFA-Technische Notiz, SPT/31/1977; 16. Mai 1977
- /27/ Rückert, M.:
KFA-Technische Notiz, SPT/54/1976; 16. Sept. 1976
- /28/ Malý, V.:
Ankopplung der Rechenprogramme EREBUS, NECKAR und FIMEX
innerhalb des Systems AVR-70.
AVR-Interne Notiz, 1.12.1976
- /29/ Malý, V.; Weber, J.:
Zeitliche Zusammenstellung der die Reaktorfahrt des AVR
kennzeichnenden Ereignisse.
AVR-Interne Notiz, 10.5.1977
- /30/ Malý, V.:
AVR-Datenerfassungssystem; Datenaufbereitung und -verarbeitung.
AVR-Interne Notiz, 6.4.1976

- /31/ Wischnewski, R.:
Erkenntnisse aus den radialen Temperaturprofilmessungen
auf den Winkelgraden 5° und 245°. AVR-Interne Notiz, 12.7.1977
- /32/ Wischnewski, R.:
persönliche Mitteilung, 1976
- /33/ Wimmers, M.:
Experimentelle Bestimmung der Aktivitäten fester Spalt-
produkte im Kühlgas des Hochtemperaturreaktors AVR.
Als Doktorvortrag gehalten, 21.12.1976
- /34/ Engelhard, J. et al.:
Das Reaktorexperiment VAMPYR im AVR.
Reaktortagung, Karlsruhe, 1973, Tagungsbericht S. 31
- /35/ v. d. Decken:
persönliche Mitteilung, 1977
- /36/ Wahl, J.; Krüger, M.:
Zusammenstellung der Kaltgasfilterversuche seit Erhöhung
der Kühlgastemperatur auf 950 °C.
AVR-Interne Notiz, 9.9.1976
- /37/ Wahl, J.; Weihs, W.:
Zusammenfassung der Staubfilterversuche 6 - 10 und Vergleich
mit den Filterversuchen 11 - 14.
AVR-Interne Notiz, 2.12.1976
- /38/ Gottaut, H.:
Spezifische Aktivitäten von Spalt- und Aktivierungsprodukten
im heißen AVR-Kühlgas am Eintritt in die Versuchsstrecke
VAMPYR. Ergebnisse der VAMPYR-Experimente V03 - V13.
KFA-Aktennotiz IRB/RTA, AN-22-75, 15.8.1975
- /39/ Gottaut, H. et al.:
Nachuntersuchung des Bestrahlungsexperimentes VAMPYR 07, V07.
Arbeitsprotokoll AB-2-74, 22. April 1974
- /40/ Wahl, J.:
persönliche Mitteilung, 1977
- /41/ Wahl, J.:
VAMPYR-Versuche V12, V13, V15, V16.
AVR-Interne Notiz, 18. April 1977

- /42/ Wahl, J. et al.:
Aktivitäten fester Spaltprodukte im Kühlgas des AVR-Reaktors
beim 950-°C-Betrieb.
Reaktortagung, Mannheim, 1977, Tagungsbericht S. 829
- /43/ Wagemann, R.:
persönliche Mitteilung
- /44/ Wahl, J.:
Veröffentlichung, in Vorbereitung
- /45/ i.d. Schmitt, W.:
AVR-Kühlgasaktivität: Stand 12. März 1976
HOBEG-Notiz, Hanau, 16. April 1976
- /46/ Gottaut, H. et al.:
Arbeitsprotokoll, Nachuntersuchung des Experimentes
VAMPYR 13, V13.
Jülich, 15.7.1975
- /47/ Wischnewski, R.:
Zuordnung von Coreradien zu Meßradien.
AVR-Interne Notiz, 2. Juni 1976
- /48/ Uhlenbusch, L.:
Rechnung zum Konzeptvergleich HHT/HTR-K.
private Mitteilung, August 1977

NACHWORT

Während der Erstellung dieser Arbeit wurde eine Reihe bisher gebräuchlicher Maßeinheiten durch neue, aus dem internationalen Einheiten-System (SI) stammende Einheiten ersetzt.

Die hier verwendeten Einheiten folgen in der Regel den im "Gesetz über Einheiten im Maßwesen" festgelegten Normen.

Im Falle der Einheit der Aktivierungsenergie (cal) und der Radioaktivität (Ci) wurde jedoch von einer Anpassung an die neue Norm (J, 1/s) abgesehen, da der Vergleich mit den bisher gebräuchlichen Werten unnötig erschwert worden wäre.

Für diese Fälle gilt folgende Umrechnung:

$$1 \text{ cal} \hat{=} 4,1868 \text{ J},$$

$$1 \text{ Ci} \hat{=} 3,7 \cdot 10^{10} \text{ 1/s} \hat{=} 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}.$$